www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

18e JAARGANG No. 9, blz. 253-284 SEPTEMBER 1956

Philips Technisch Tijdschrift

BEHANDELENDE TECHNISCHE VRAAGSTUKKEN
SAMENHANGENDE MET DE PRODUKTEN, WERKWIJZEN EN ONDERZOEKINGEN
VAN DE N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

REDACTIE: NATUURKUNDIG LABORATORIUM DER N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN, EINDHOVEN

FERROXPLANA, HEXAGONALE FERROMAGNETISCHE IJZEROXYDE-VERBINDINGEN VOOR ZEER HOGE FREQUENTIES

door G. H. JONKER, H. P. J. WIJN en P. B. BRAUN. 621.318.134

Ferroxcube wordt tegenwoordig als magnetisch zacht materiaal bij hoge frequenties op grote schaal toegepast. Voor deze toepassing van ferroxcube bestaat een bovenste frequentiegrens van de orde van 100 MHz. In het Philipslaboratorium te Eindhoven zijn nu enige groepen van nieuwe magnetisch zachte materialen ontwikkeld, die bij aanzienlijk, b.v. 5× hogere frequenties toegepast kunnen worden. Deze materialen worden, evenals ferroxcube en ferroxdure, door sinteren van metaaloxydes bereid. In dit artikel worden de samenstelling en enkele eigenschappen van de nieuwe stoffen besproken.

Inleiding

Ferroxcubematerialen vertonen bij hoge frequenties, in het kort samengevat, het volgende gedrag [1]). De permeabiliteit die optreedt bij kleine magnetische veldsterkte, de zg. beginpermeabiliteit μ_i, die voor verschillende toepassingen van belang is, is voor een bepaalde ferroxcubesoort constant tot een bepaalde grensfrequentie, die b.v. tussen 10 en 100 MHz kan liggen. Indien de frequentie boven de bedoelde grens wordt opgevoerd, neemt μ_i af en gaan de magnetische verliezen sterk toenemen.

Bij de verschillende ferroxcubesoorten vindt men voor het produkt van de beginpermeabiliteit bij lage frequentie en de frequentie waarbij deze permeabiliteit gaat dalen, nagenoeg dezelfde waarde. Door Snoek [2]) [3]) is hiervoor een verklaring gevonden, die op het volgende berust. Het materiaal is, magnetisch gezien, verdeeld in een groot aantal gebiedjes, de gebieden van Weiss. In ieder gebiedje heerst de verzadigingsmagnetisatie, en deze magnetisatie is met een zekere stijfheid aan een bepaalde voorkeursrichting gebonden. Wordt aan de magnetisatievector door een tijdelijk werkende oorzaak een afwijking van de voorkeursrichting gegeven, dan zal hij door de genoemde binding en doordat het magnetisch moment met een mechanisch impulsmoment (elektronenspin) is verbonden, een precessiebeweging om de voorkeursrichting gaan uitvoeren, met een frequentie f_r die evenredig is met de stijfheid van de binding [4]). Wordt het materiaal in een wisselend uitwendig magnetisch veld gebracht en laat men de frequentie van dit veld de waarde f_r naderen, dan treedt een resonantieverschijnsel op, dat verantwoordelijk is voor de bovenvermelde grote magnetische verliezen en de daling van de permeabiliteit. Anderzijds wordt in ferroxcubematerialen de beginpermeabiliteit bij lage frequentie μ_i — waarvan kan worden aangenomen dat zij in hoofdzaak op draaiing van de magnetisatievector in elk Weiss-gebied berust — eveneens grotendeels bepaald door de stijfheid waarmee de magnetisatie aan de voorkeursrichting is gebonden. De susceptibiliteit bij lage frequentie χ_i, die gelijk is aan $\mu_i - 1$ *), is met deze stijfheid omgekeerd even-

[1]) Zie b.v. J. J. Went en E. W. Gorter, Philips techn. T. **13**, 213-227, 1951.
[2]) J. L. Snoek, Nature **160**, 90, 1947.
[3]) J. L. Snoek, Physica **14**, 207-217, 1948.
[4]) Zie voor een uitvoeriger bespreking: H. G. Beljers en J. L. Snoek, Philips techn. T. **11**, 317-325, 1949.
*) *Noot van de Redactie:* Dit geldt in het Giorgi-eenhedenstelsel. Met μ is in dit artikel steeds bedoeld de relatieve permeabiliteit ten opzichte van die van het vacuüm, μ_0. In het e.g.s.-eenhedenstelsel geldt $\chi_i = \frac{\mu_i - 1}{4\pi}$. In dit artikel worden de grootheden die in het e.g.s.-stelsel worden opgegeven, tussen vierkante haken gezet. Voor de hier gebruikte magnetisatie M geldt in het Giorgi-stelsel de formule:

$$B = \mu_0 (H + M).$$

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

redig, zodat we kunnen verwachten dat het produkt $\chi_i f_r$ een constante is, die vrijwel niet van de soort ferroxcube afhangt. Uit kwantitatieve beschouwingen leidt men voor dit produkt een waarde af die in goede overeenstemming is met het experiment.

Door de betrekking tussen χ_i en f_r wordt een absolute frequentiegrens gesteld aan de toepasbaarheid van ferroxcubes als magnetisch zacht materiaal. Men zal de frequentie waarbij men het materiaal wenst te gebruiken, altijd kleiner moeten kiezen dan f_r. Voor zeer hoge waarden van f_r zal, wegens de constante waarde van het produkt $\chi_i f_r$, slechts een beginpermeabiliteit van omstreeks 1 beschikbaar zijn, waarbij het gebruik van het materiaal geen zin meer heeft.

In dit artikel zullen nieuwe ferromagnetische materialen worden behandeld, die evenals ferroxcube van niet-metallische aard zijn en derhalve door hun grote soortelijke weerstand bij hoge frequenties kunnen worden gebruikt. Ook bij deze materialen is de magnetisatie aan een voorkeursrichting gebonden. Het merkwaardige is echter dat hier de stijfheid der binding afhangt van de richting waarin de magnetisatie uit de evenwichtspositie wordt gedraaid. Voor een dergelijk geval heeft Snoek [3]) reeds gewezen op de mogelijkheid om in principe het bovengenoemde verband tussen χ_i en f_r te doorbreken. Onder de bedoelde nieuwe stoffen bevinden zich dan ook inderdaad magnetisch zachte stoffen die tot veel hogere frequenties bruikbaar zijn dan ferroxcube; zij hebben b.v. tot 1000 MHz een van de frequentie onafhankelijke beginpermeabiliteit van omstreeks 10. Voor deze nieuwe materialen stellen wij de soortnaam ferroxplana voor. De betekenis van deze naam zal verderop duidelijk worden.

Wij willen nu eerst het een en ander mededelen omtrent de chemische samenstelling van de nieuwe verbindingen. Daarna behandelen we hun magnetische eigenschappen, waarbij we in het bijzonder ingaan op het verschijnsel van de ferromagnetische resonantie in het genoemde geval dat de magnetisatie in verschillende richtingen met een verschillende stijfheid aan de evenwichtsstand is gebonden.

Chemische samenstelling van de nieuwe verbindingen

De nieuwe materialen zijn verbindingen van de oxydes BaO, Fe_2O_3 en MeO. Met Me wordt hier bedoeld één van de (kleine) tweewaardige ionen van Mn, Fe, Co, Ni, Zn of Mg, of ook wel een mengsel van deze ionen. De bereiding van de materialen geschiedt door bepaalde mengsels van deze oxydes gedurende enige tijd te verhitten op een temperatuur van 1200 tot 1400 °C, waardoor een gesinterd keramisch produkt wordt verkregen.

De samenstelling van deze verbindingen kan worden weergegeven in een driehoek, waarvan de samenstellende oxydes de hoekpunten vormen (*fig. 1*). De punten **S**, **M** en **B** op de zijden van deze driehoek stellen de volgende, reeds bekende, verbindingen voor.

S: $MeFe_2O_4$, de ferrieten met de kubische spinelstructuur (ferroxcube).

M: $BaFe_{12}O_{19}$, met de hexagonale magnetoplumbietstructuur, het hoofdbestanddeel van het magnetisch harde materiaal ferroxdure.

B: $BaFe_2O_4$, een niet-ferromagnetische verbinding.

Bij het onderzoek naar magnetisch harde materialen werd vroeger reeds binnen de genoemde driehoek de verbinding $BaFe_2^{II}Fe_{16}^{III}O_{27}$ gevonden [5]).

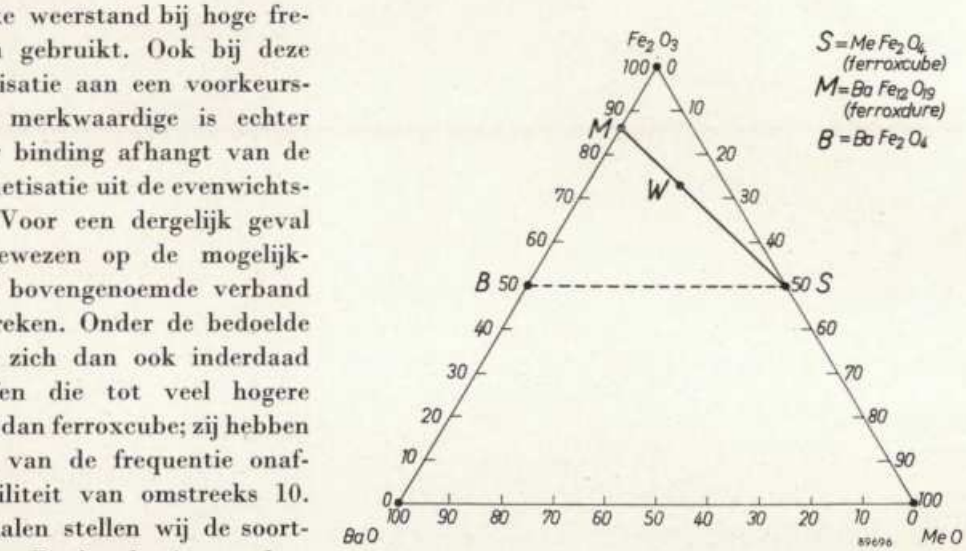

Fig. 1. De samenstelling van de verbindingen **W** wordt voorgesteld door een punt in de getekende driehoek. Het teken Me staat voor één van de tweewaardige ionen Mn, Fe, Co, Ni, Zn of Mg of ook een mengsel van deze. De reeds bekende materialen ferroxcube (**S**), ferroxdure (**M**) en $BaFe_2O_4$ (**B**) worden voorgesteld door punten op de zijden van de driehoek.

Deze verbinding wordt in fig. 1 voorgesteld door het punt **W** op de verbindingslijn van **M** en **S**, waarbij dan Me een Fe^{II}-ion voorstelt. Het bestaan van deze verbinding was de aanleiding om te onderzoeken of een reeks overeenkomstige verbindingen bereid kan worden met in plaats van de Fe^{II}-ionen andere kleine tweewaardige metaalionen, Me. (Een dergelijke substitutie is bij $Fe^{II}Fe_2^{III}O_4$ mogelijk en leidt daar tot de verbindingen S, de ferroxcubes.)

De bereiding van dergelijke „gesubstitueerde" **W**-verbindingen wordt nagegaan en de volledigheid

[5]) H. P. J. Wijn, Nature **170**, 707, 1952.
P. B. Braun, Nature **170**, 708, 1952.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

van de omzetting van een oxydemengsel wordt gecontroleerd door van het eindprodukt in poedervorm röntgendiffractiediagrammen te maken. Doordat echter **M** en **W** een sterk verwante structuur hebben (zie [5]), kunnen in de poederdiagrammen kleine hoeveelheden **M**, die als bijprodukt optreden bij onvolledige omzetting, naast **W** niet gemakkelijk herkend worden (zie *fig. 2*). Op de volgende wijze kan men deze moeilijkheid ontgaan.

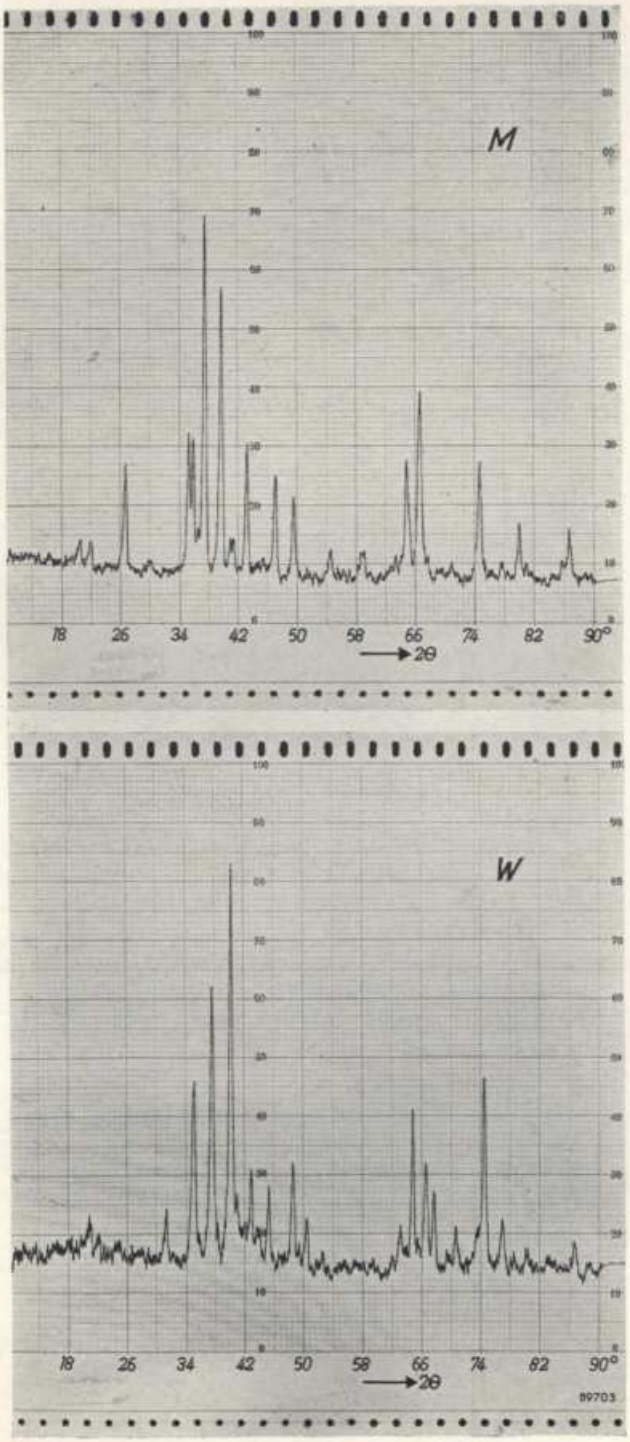

Fig. 2. Röntgendiffractiediagrammen van poeders van **M** en **W**, opgenomen met CoKα-straling.

De **W**-verbindingen zijn evenals **M** ferromagnetisch met een hexagonale kristalstructuur. De voorkeursrichting van de magnetisatie staat parallel aan de hexagonale as. De kleine kristalletjes in gepoederde materialen zullen zich derhalve in een magneetveld zodanig oriënteren dat de hexagonale as van ieder kristalletje min of meer evenwijdig aan de krachtlijnen komt te staan. Men brengt nu enkele druppels van een suspensie van het gepoederde preparaat in een oplossing van een bindmiddel op een glasplaatje aan, en schakelt dan een sterk magneetveld loodrecht op dit plaatje in. Wanneer men het bindmiddel laat opdrogen en daarna het magneetveld uitschakelt, blijven de kristalletjes liggen met de hexagonale as loodrecht op het glasoppervlak. In het röntgendiffractiediagram van zulke preparaten, geregistreerd met een diffractometer [6]), komen de röntgenreflecties tegen de vlakken loodrecht op de hexagonale as zeer versterkt te voorschijn, terwijl de andere reflecties bijna verdwijnen. Hierdoor wordt het diagram sterk vereenvoudigd, zie *fig. 3*. Deze vereenvoudigde diagrammen zijn voor **M** en **W** op karakteristieke wijze verschillend, waardoor nu gemakkelijk een kleine hoeveelheid van een dezer verbindingen naast een grote hoeveelheid van de andere kan worden aangetoond.

Volgens deze methode konden de reactieprodukten die bij het sinteren van de oxydemengsels ontstaan, nauwkeurig worden onderzocht. Hierdoor kon de bereidingsmethode zover worden verbeterd dat zuivere verbindingen konden worden verkregen, waarbij de Fe^{II}-ionen geheel of gedeeltelijk door andere ionen zijn vervangen. We zullen de afzonderlijke verbindingen van deze groep, die we algemeen met het symbool **W** aanduiden, kenmerken door de symbolen van de betreffende tweewaardige ionen vóór de **W** te plaatsen. Zo betekent NiZn**W** de verbinding $BaNiZnFe_{16}O_{27}$.

Bij een algemeen onderzoek van de reactieprodukten verkregen uit mengsels van BaO, Fe_2O_3 en MeO, bleek dat nog andere ferromagnetische verbindingen gevormd werden. Ook de poederdiagrammen van deze verbindingen bleken zo veel op die van **M** en **W** te gelijken dat het alleen met behulp hiervan niet mogelijk was te bepalen bij welke samenstellingen van de oxydemengsels deze verbindingen in zuivere toestand ontstaan. Daarom werd hier eveneens de methode van het richten in een magneetveld toegepast, en ook nu trad een karakteristieke vereenvoudiging in de röntgendia-

[6]) Bij het diffractie-onderzoek met een diffractometer worden juist dergelijke vlakke preparaten gebruikt. Zie: W. Parrish, E. A. Hamacher en K. Lowitzsch, Philips techn. T. **16**, 253-264, 1954.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

grammen op. Hierdoor kon worden vastgesteld dat twee verbindingen optreden, die in de reeds vermelde driehoek door de punten **Y** en **Z** worden aangegeven, zie *fig. 4*, met de chemische formules:

$Ba_2Me_2Fe_{12}O_{22}$ [7]) voor **Y**

en $Ba_3Me_2Fe_{24}O_{41}$ voor **Z**.

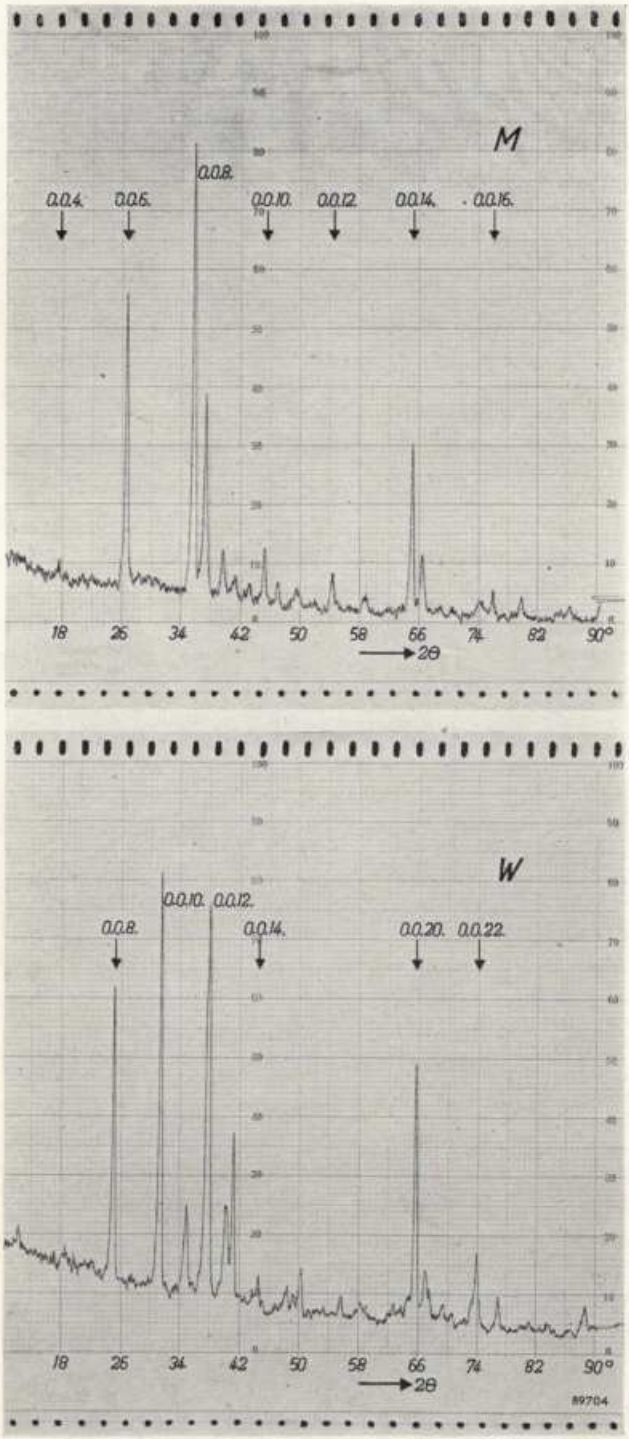

Fig. 3. Röntgendiffractiediagrammen van gerichte poederpreparaten van **M** en **W**. De reflecties tegen de basisvlakken, die door de indices 0.0.*l* zijn aangegeven, zijn versterkt ten opzichte van fig. 2.

Bij verder onderzoek bleken deze verbindingen hexagonale kristalstructuren te bezitten, die verwant zijn aan die van **M** en **W** (zie Aanhangsel).

Indien voor Me de verschillende tweewaardige ionen worden gesubstitueerd, ontstaan groepen van verbindingen, die we de **Y**-groep resp. de **Z**-groep noemen. De afzonderlijke verbindingen in deze groepen duiden we op analoge wijze aan als die in de **W**-groep.

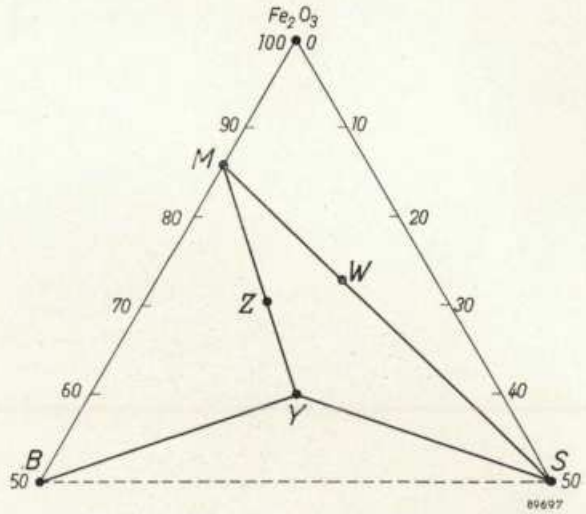

Fig. 4. Ligging van de punten voor de nieuwe verbindingen **Y** en **Z** in de reeds eerder getekende driehoek (fig. 1), waarvan hier alleen het bovenste gedeelte is weergegeven.

Voorkeursrichting en voorkeursvlak

Uit de röntgendiagrammen van de gerichte preparaten (*fig. 5*) leidt men af dat de kristalletjes van de **Z**- en de **Y**-preparaten verschillend georiënteerd zijn ten opzichte van het magneetveld. Het blijkt dat in de meeste **Z**-preparaten de hexagonale as (*c*-as) evenwijdig aan het magneetveld gaat staan; de spontane magnetisatie van deze verbindingen is dus gericht volgens de *c*-as. Deze as is een voorkeursrichting, evenals het geval is bij **M** en bij de **W**-groep. Bij alle **Y**-preparaten daarentegen staat de hexagonale as loodrecht op de magnetische krachtlijnen, met overigens nog willekeurige richtingen van de andere assen; dit betekent dat de spontane magnetisatie van de **Y**-verbindingen gelegen is in een vlak loodrecht op de *c*-as. In dit vlak, dat we het voorkeursvlak noemen, is de magnetisatie nagenoeg vrij draaibaar.

Bij het verdere onderzoek is gebleken dat een voorkeursvlak niet uitsluitend bij de **Y**-groep voor-

[7]) Men krijgt hier een eenvoudiger chemische formule door het aantal van alle atomen te halveren, dus $BaMeFe_6O_{11}$. Dat niettemin de bovenstaande formule is gekozen, vindt zijn reden in het feit dat deze formule — evenals de formules van de andere hier besproken verbindingen — het juiste aantal atomen per „structuureenheid" aangeeft, zoals we verderop zullen zien.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

komt, maar ook bij die verbindingen van de **Z**- en **W**-groep waarbij voor Me geheel of gedeeltelijk het Co-ion is gesubstitueerd. In *tabel I* hebben we voor alle nieuwe verbindingen waarin voor Me één soort ionen is gesubstitueerd, aangegeven of er een voorkeursrichting (↑) dan wel een voorkeursvlak (⊥)

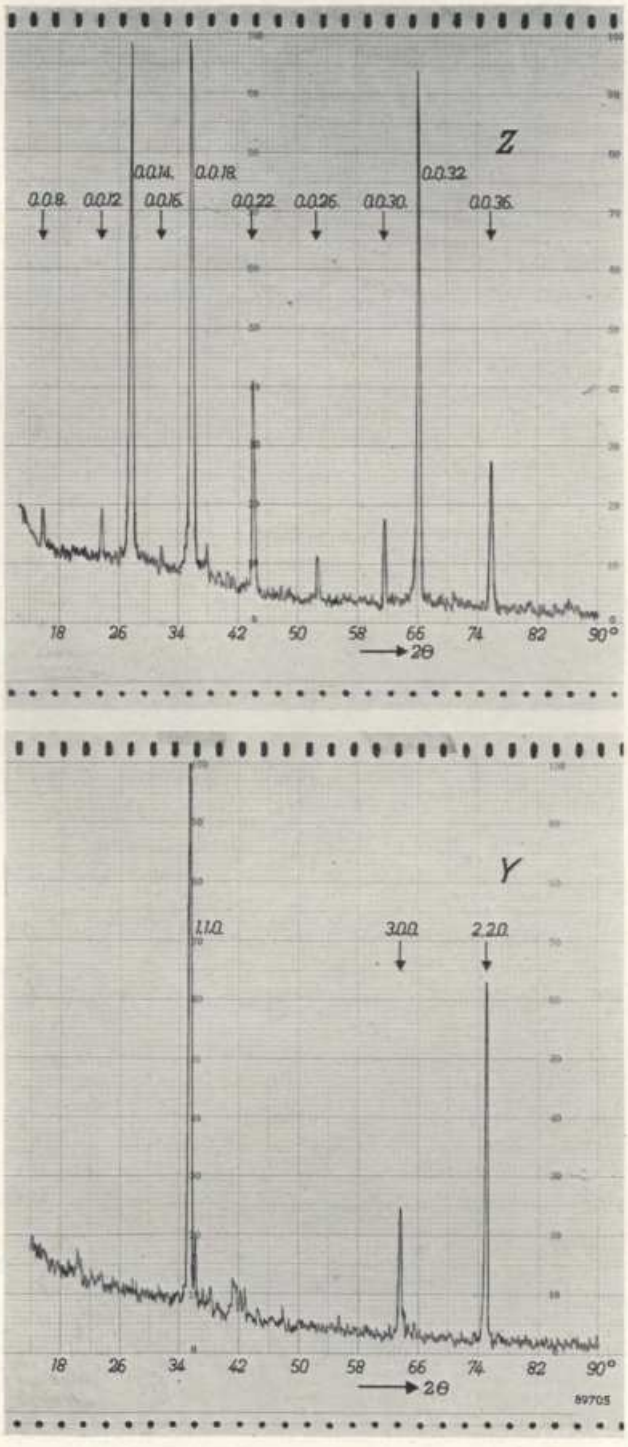

Fig. 5. Röntgendiffractiediagrammen van gerichte poederpreparaten van **Z** en **Y**. Bij **Z** zijn wederom de reflecties tegen 0.0.*l*-vlakken (basisvlakken) versterkt, bij **Y** daarentegen de reflecties tegen *h.k.*0-vlakken (vlakken evenwijdig aan de hexagonale as).

Tabel I. Optreden van een voorkeursrichting (↑) dan wel een voorkeursvlak (⊥) in de beschreven verbindingen.

Groep	Tweewaardig ion gesubstitueerd voor Me					
	Mn	Fe	Co	Ni	Zn	Mg
W	↑	↑	⊥	↑	↑	↑
Z	↑	↑	⊥	↑	↑	↑
Y	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥

optreedt. Het optreden van een voorkeursvlak heeft belangrijke consequenties voor het magnetisch gedrag, waarop we straks nader zullen ingaan. Voor de verschillende hier opgesomde groepen van ijzeroxydeverbindingen met een voorkeursvlak voor de magnetisatie stellen wij de soortnaam ferroxplana voor. In *tabel II* zijn de verzadigingsmagnetisatie en de curietemperatuur voor enkele der nieuwe materialen, zowel met voorkeursvlak als met voorkeursrichting, vermeld.

Het optreden van een voorkeursvlak kunnen we ook meer kwantitatief uitdrukken. Als in een hexagonale structuur een voorkeursrichting optreedt, dan geldt voor de energie E die per volume-eenheid nodig is om de magnetisatie over een hoek Θ uit de richting van de hexagonale as te draaien, in eerste benadering [8]):

$$E = K \sin^2 \Theta. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (1)$$

De grootheid K wordt de kristalanisotropieconstante genoemd. We zien dat voor positieve K de richting $\Theta = 0$, d.i. de c-as, de richting van de kleinste energie is. In het geval van een voorkeursvlak moet het energieminimum voor $\Theta = 90°$ optreden, hetgeen betekent dat dan K in verg. (1) negatief moet zijn.

Tabel II. Verzadigingsmagnetisatie $\mu_0 M$ bij 20 °C en curietemperatuur T_c voor enkele der nieuwe materialen, gecorrigeerd voor de porositeit. Ter vergelijking is ook $\mu_0 M$ en T_c voor ferroxcube 4E vermeld.

Stof	$\mu_0 M$ in 10^{-4} Wb/m² [$4\pi M$ in gauss]	T_c in °C
Mn_2W	4000	410
CoFeW	4500	430
ZnFeW	4800	422
$Ni_{0.5}Zn_{0.5}Fe_1W$	4600	425
Co_2Y	2900	340
Mg_2Y	1400	300
Co_2Z	3500	400
ferroxcube 4E	3260	595

[8]) Zie J. J. Went, G. W. Rathenau, E. W. Gorter en G. W. van Oosterhout, Philips techn. T. **14**, 33-48, 1952.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

We kunnen dus het optreden van een voorkeursvlak uitdrukken door te zeggen dat de desbetreffende verbindingen een negatieve kristalanisotropie hebben. We zouden ook kunnen zeggen dat de richting $\Theta = 0$ een „afkeersrichting" voor de magnetisatie is.

Als we Co in de **W**- of **Z**-groep vervangen door een mengsel van Co met een toenemende hoeveelheid van een ander ion, b.v. Zn, dan zien we het voorkeursvlak bij een bepaald percentage Zn in een voorkeursrichting overgaan. De kristalanisotropie, die eerst negatief was, verandert met toenemend Zn-gehalte geleidelijk in een positieve waarde.

Bij kubische ferromagnetische materialen als b.v. ferroxcube (spinelstructuur) kan men de kristalanisotropie-energie ook invoeren. Wegens de kubische structuur moet nu echter de energie E invariant zijn ten opzichte van een verwisseling van de ribben van de kubus, die immers gelijkwaardig zijn. Zijn α_1, α_2 en α_3 de richtingscosinussen van een bepaalde richting ten opzichte van de drie kristallografische assen, dan is de eenvoudigste in aanmerking komende formule, die nu in de plaats komt van (1):

$$E = K' (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2). \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (2)$$

Deze formule is bij benadering juist. We kunnen hieruit afleiden dat K' positief is wanneer de kubusribben de voorkeursrichtingen zijn, en negatief wanneer de kubus-(lichaams)-diagonalen voorkeursrichtingen zijn.

Ook bij deze ferrieten blijkt dat de Co-substitutie tot een tekenverandering van K' aanleiding geeft: K' is voor kobaltferriet positief [9]) en voor alle andere ferrieten negatief. Als we de structuren van de kubische en de hexagonale verbindingen onderling vergelijken en ze beide opvatten als een dichtste bolstapeling van O-ionen, dan zijn de richtingen van de kubusdiagonalen gelijkwaardig met de c-as van de hexagonale structuur. Indien dit de voorkeursrichtingen zijn (en dit is in beide soorten verbindingen het geval als geen Co aanwezig is, wanneer men de **Y**-groep buiten beschouwing laat), dan is de anisotropie in de hexagonale stoffen positief, in de kubische daarentegen negatief. Het tekenverschil voor de anisotropie bij de vergelijking van kubische en hexagonale verbindingen ontstaat door de definitie van K en K' in (1) resp. (2). Deze definities zijn ingeburgerd en we zullen ze daarom gebruiken, hoewel ze tot verwarring aanleiding kunnen geven.

Het technische belang van materialen met voorkeursvlak

Al naar gelang bij de hexagonale verbindingen een voorkeursrichting dan wel een voorkeursvlak optreedt, is het eventuele toepassingsgebied van deze materialen sterk verschillend.

Indien een voorkeursrichting optreedt, is de bijbehorende kristalanisotropie in het algemeen aanzienlijk groter dan bij de kubische verbindingen (ferroxcube). De magnetisatie is dan sterk aan deze richting gebonden, waardoor zulke materialen in principe in aanmerking komen voor toepassing als permanent magnetisch materiaal, met soortgelijke eigenschappen als ferroxdure (**M**).

Bij aanwezigheid van een voorkeursvlak is de magnetisatie in dit vlak nagenoeg vrij draaibaar, althans de draaiing wordt niet door de waarde van K bepaald, die alleen aangeeft welke energie voor een draaiing uit het vlak nodig is. Er zijn nog wel andere anisotropieën, zoals spannings- en vormanisotropie (zie [1])), die een voorkeursrichting in het vlak geven en de draaiingen in het vlak zullen tegenwerken, maar deze anisotropieën zijn in het algemeen veel kleiner dan de besproken kristalanisotropie (zij treden b.v. ook bij ferroxcube op). Van ferroxplanamaterialen kan men dus geen permanente magneten maken, integendeel, zij kunnen in principe een grote permeabiliteit hebben en zijn dan geschikt als magnetisch zachte materialen. Door hun niet-metallisch karakter hebben deze materialen soortgelijke toepassingsmogelijkheden als de ferroxcubes, met name voor hoge frequenties. Het blijkt echter dat de ferromagnetische resonantie, die de toepassingsmogelijkheden beperkt, bij vele ferroxplanamaterialen eerst bij veel hogere frequenties optreedt dan bij ferroxcube. Als voorbeeld is in *fig. 6* de experimenteel bepaalde beginpermeabiliteit μ_i van de verbinding Co_2**Z** als functie van de frequentie uitgezet. Daarnaast is ook de permeabiliteit van het kubische nikkelferriet, ferroxcube 4E, opgenomen. Zoals gebruikelijk, zijn van de beginpermeabiliteit het reële deel μ' en het imaginaire deel μ'' bepaald (zie b.v. [1])); μ'' is evenredig met de optredende verliezen en voor de verlieshoek δ geldt:

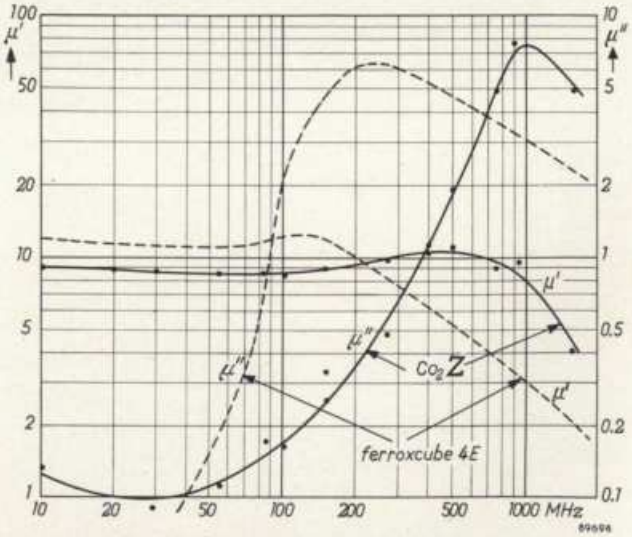

Fig. 6. Het reële deel μ' en het imaginaire deel μ'' van de beginpermeabiliteit μ_i als functie van de frequentie f, voor de materialen Co_2**Z** (getrokken lijnen) en kubisch nikkelferriet, ferroxcube 4E (gestippelde lijnen).

[9]) R. M. Bozorth, E. F. Tilden en A. T. Williams, Phys. Rev. **99**, 1788-1798, 1955.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

$\operatorname{tg}\delta = \mu''/\mu'$. Men ziet duidelijk dat, hoewel de permeabiliteit bij lage frequentie voor beide stoffen ongeveer gelijk is, de waarde van μ' voor Co_2Z bij 1000 MHz nauwelijks verschilt van die bij lage frequentie, terwijl μ' voor ferroxcube 4E bij 1000 MHz vrijwel gelijk aan 1 geworden is. Nog beter ziet men het verschil in ferromagnetische resonantiefrequentie als men de krommen voor μ'' onderling vergelijkt. Als men alleen op het niveau van de verliezen let, is Co_2Z bruikbaar tot een circa 5 maal hogere frequentie dan ferroxcube 4E.

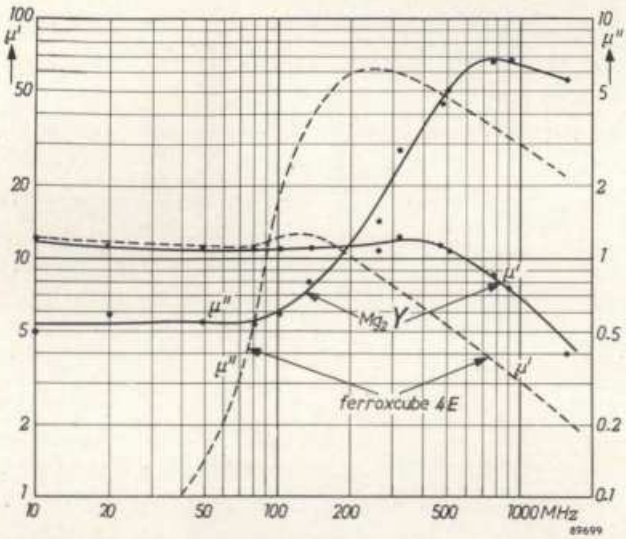

Fig. 7. μ' en μ'' als functie van f voor de materialen Mg_2Y (getrokken lijnen) en ferroxcube 4E (gestippelde lijnen).

Fig. 7 geeft op dezelfde wijze een vergelijking van ferroxcube 4E met de verbinding Mg_2Y. Ook hier vinden we hetzelfde kenmerk van de tot hogere frequentie constante beginpermeabiliteit van Mg_2Y. Overeenkomstige resultaten geven vele andere ferroxplanamaterialen.

In het volgende hoofdstuk zal worden aangetoond hoe men dit gedrag van ferroxplana theoretisch kan begrijpen.

Ferromagnetische resonantie bij materialen met een voorkeursvlak

De resonantiefrequentie

In de inleiding is uiteengezet dat de ferromagnetische resonantie bij de kubische verbindingen berust op de stijfheid van de binding aan de voorkeursrichting en het fundamentele samengaan van een magnetisch moment met een mechanisch impulsmoment. We gaan dit nog even kwantitatief na. De binding aan de voorkeursrichting kunnen we voor kleine uitwijkingen beschrijven met behulp van een schijnbaar inwendig magnetisch veld H_A in deze richting, het anisotropieveld, waarvoor geldt:

$$H_A = \frac{2K}{\mu_0 M},$$

als M de verzadigingsmagnetisatie voorstelt. Dat dit veld equivalent met de anisotropie is, ziet men daaraan dat het koppel $\mu_0 \left[\overrightarrow{MH_A}\right]$, dat bij draaiing van de magnetisatie over een kleine hoek Θ uit de voorkeursrichting optreedt, de grootte $2K\Theta$ heeft. Dit koppel is gelijk aan de verandering van het impulsmoment per tijdseenheid en dus:

$$\left[\overrightarrow{MH_A}\right] = \frac{\dot{M}}{\gamma}; \quad \ldots\ldots\ldots \quad (3)$$

γ is de gyromagnetische verhouding, dat is de verhouding tussen magnetisch moment en bijbehorend impulsmoment (0,221 MHz/(A/m) [17,6 MHz/Oe]). Hieruit kunnen we eenvoudig de resonantiefrequentie f_r' afleiden:

$$2\pi f_r' = \gamma H_A. \quad \ldots\ldots\ldots \quad (4)$$

Vervolgens beschouwen we het gecompliceerdere geval van de resonantie bij een voorkeursvlak. *Fig. 8* verduidelijkt de situatie; het xy-vlak is hier als

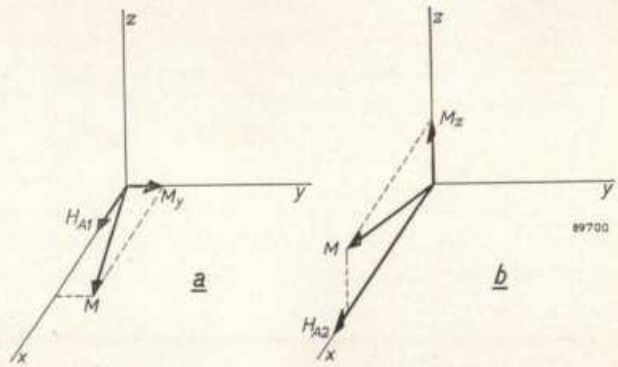

Fig. 8. *a*) Bij draaiing van de magnetisatie *in* het voorkeursvlak (het xy-vlak) treedt het anisotropieveld H_{A1} op.
b) Bij draaiing *uit* het voorkeursvlak heeft men te maken met het veel grotere anisotropieveld H_{A2}.

voorkeursvlak gekozen. Stel dat de magnetisatie M in dit vlak nog een (zwakke) voorkeur heeft voor de x-richting, welke voorkeur te beschrijven is met een anisotropieveld H_{A1}. We hebben met deze anisotropie te maken bij de in fig. 8*a* voorgestelde draaiing van M uit de x-richting naar de y-richting, dus *in* het voorkeursvlak. Bij draaiingen van M in de z-richting, waarbij M dus *uit* het voorkeursvlak treedt (fig. 8*b*), hebben we te maken met het veel grotere anisotropieveld H_{A2}.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Onder invloed van beide anisotropievelden zal M bij een uitwijking uit de x-richting ook nu een precessie gaan uitvoeren, met een voorlopig nog onbekende frequentie f_r. In de situatie van fig. 8*a* kunnen we schrijven:

$$\gamma M_y H_{A1} = \dot{M}_z, \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (5)$$

terwijl in de situatie van fig. 8*b* geldt:

$$\gamma M_z H_{A2} = -\dot{M}_y. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (6)$$

Door substitutie van de afgeleide van (5) in (6) krijgen we:

$$\gamma^2 H_{A1} H_{A2} M_z + \ddot{M}_z = 0, \quad . \quad . \quad . \quad (7)$$

en voor M_y kunnen we een dergelijke vergelijking vinden. De gezochte frequentie is nu gemakkelijk te bepalen; we vinden:

$$2\pi f_r = \gamma \sqrt{H_{A1} H_{A2}} \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (8)$$

f_r is dus evenredig met het meetkundig gemiddelde van de anisotropievelden [3]) [10]). Zijn deze gelijk, dan vindt men, zoals verwacht mag worden, formule (4) terug.

Uit formule (8) wordt reeds duidelijk dat de resonantiefrequentie bij de materialen met voorkeursvlak zeer veel hoger kan zijn dan bij de materialen met kubische structuur. Immers, het anisotropieveld H_{A1} voor draaiing van de magnetisatie *in* het voorkeursvlak is van dezelfde orde van grootte als H_A van de ferroxcubes, terwijl het anisotropieveld H_{A2} voor draaiingen *uit* het voorkeursvlak in het algemeen veel groter is dan H_{A1}.

In fig. 6 en 7 werd getoond dat ferroxplana niet alleen een veel hogere resonantiefrequentie heeft dan ferroxcube, maar bovendien ongeveer dezelfde waarde van de beginpermeabiliteit. Dit volgt ook uit een theoretische beschouwing, die we in het kort willen weergeven.

De beginpermeabiliteit

Voor het algemene geval dat de binding van de magnetisatie aan een voorkeursrichting beschreven kan worden met twee anisotropievelden H_{A1} en H_{A2}, geldt voor de susceptibiliteit van een kristal in de drie hoofdrichtingen (zie fig. 8):

$$\chi_{xx} = 0; \quad \chi_{yy} = \frac{M}{H_{A1}}; \quad \chi_{zz} = \frac{M}{H_{A2}}.$$

Hierbij is ondersteld dat we voor deze materialen, evenals voor ferroxcube, er van kunnen uitgaan dat de susceptibiliteit in hoofdzaak op draaiprocessen berust. Bij een polykristallijn materiaal met een willekeurige oriëntatie van de kristallieten resulteert — onder verwaarlozing van hun magnetische wisselwerking — de susceptibiliteit

$$\chi = \frac{1}{3}\left(\frac{M}{H_{A1}} + \frac{M}{H_{A2}}\right). \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (9)$$

Voor materialen als b.v. ferroxcube en ook ferroxdure is in het bijzonder $H_{A1} = H_{A2} (= H_A)$, zodat formule (9) wordt vereenvoudigd tot

$$\chi_{\uparrow} = \frac{2}{3}\frac{M}{H_A}. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (10a)$$

Aan het feit dat H_A voor ferroxcubes klein is (ca. 10^2-10^4 A/m [1-100 Oe]), hebben deze hun grote beginpermeabiliteit te danken.

Voor de hier beschreven materialen met voorkeursvlak is $H_{A2} \gg H_{A1}$, en wel is H_{A1} vergelijkbaar in grootte met H_A van ferroxcube, terwijl H_{A2} van dezelfde orde van grootte is als H_A van ferroxdure (ongeveer 10^6 A/m [ca. 10^4 Oe]). Men kan dus met goede benadering schrijven:

$$\chi_{\perp} = \frac{1}{3}\frac{M}{H_{A1}}. \quad . \quad . \quad . \quad . \quad (10b)$$

Uit deze formule volgt dat ook bij ferroxplana in principe behoorlijke waarden van de permeabiliteit kunnen optreden, aangezien M hierbij waarden vergelijkbaar met die van ferroxcube heeft (zie tabel II).

Ten slotte willen we het essentiële verschil in gedrag tussen ferroxplana en ferroxcube nog illustreren op een manier die reeds door Snoek (voor eenkristallen) is toegepast [3]). Door combinatie van verg. (8) en (9) krijgt men de formule:

$$2\pi f_r \chi = \frac{2}{3}\gamma M\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{H_{A1}}{H_{A2}}} + \frac{1}{2}\sqrt{\frac{H_{A2}}{H_{A1}}}\right). \quad (11)$$

Voor ferroxcubes is de factor tussen haken steeds gelijk aan 1; voor een gegeven waarde van de permeabiliteit komt men derhalve steeds tot ongeveer dezelfde frequentiegrens. Dit is in de inleiding uitvoerig besproken. In het geval $H_{A2} \neq H_{A1}$, zoals bij ferroxplana, is de factor tussen haken steeds groter dan 1, in een mate die nog afhangt van H_{A2}/H_{A1}. Bij vergelijkbare waarden van de permeabiliteit geeft de factor onmiddellijk aan, hoever de frequentiegrens bij ferroxplana ten opzichte van ferroxcube is verhoogd.

Vergelijking van theorie en experiment

De formule (8) konden we voor verschillende

[10]) C. Kittel, Phys. Rev. **73**, 155-161, 1948.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

materialen aan het experiment toetsen, doordat van deze materialen eenkristallen konden worden vervaardigd, waaraan H_{A2} rechtstreeks werd gemeten; H_{A1} kan volgens verg. (10b) worden berekend uit de grootheden $\chi_\perp$ en M, die men meet aan de gesinterde materialen.

Tabel III geeft een vergelijking van de aldus met behulp van formule (8) berekende waarden van de resonantiefrequentie met die welke direct experimenteel werden gevonden. Als experimentele resonantiefrequentie is die frequentie genomen waarvoor de permeabiliteit tot de helft van haar waarde bij lage frequentie is gedaald. De overeenkomst tussen de theoretische en de gemeten frequenties kan redelijk genoemd worden.

Tabel III. Berekende en gemeten waarden van de resonantiefrequentie voor twee materialen.

Materiaal	$\chi_\perp$ *) (bij lage freq.)	$\mu_0 M$ *) in 10^{-4} Wb/m² [$4\pi M$ in gauss]	H_{A1} in A/m	H_{A2} in A/m	f_r in 10^3 MHz berek. volg. (8)	f_r in 10^3 MHz gemeten
Co_2Z	7	2700	10^4	$1{,}1\times10^6$	3,7	2,5
Mg_2Y	9	900	$0{,}25\times10^4$	$1{,}2\times10^6$	2,1	1,0

*) De hier opgegeven waarden voor $\chi_\perp$ en M gelden voor de langs keramische weg bereide (poreuze) materialen.

Aanhangsel: De kristalstructuur der verbindingen van de W-, Y- en Z-groepen

De kristalstructuur van de nieuwe verbindingen werd bepaald met behulp van een röntgenkristallografisch onderzoek. Op dit onderzoek kunnen we hier niet nader ingaan [11]), maar de resultaten ervan kunnen, enigszins schematisch, op de volgende wijze worden samengevat. Evenals **M** en **W** hebben de verbindingen **Y** en **Z** een hexagonale kristalstructuur, die kan worden beschreven als een dichtste bolstapeling van de grote zuurstof- en bariumionen. Loodrecht op de hexagonale as bevinden zich lagen van deze ionen. In een elementaire cel bevat iedere laag vier grote ionen. In de meeste lagen zijn dit vier zuurstofionen, maar op regelmatige afstanden is er een laag met drie zuurstofionen en één bariumion. Deze bariumhoudende lagen liggen in **M** telkens om de vijf lagen en in **W** om de zeven lagen. In **Y** bevatten telkens twee naburige lagen een bariumion; op deze dubbele lagen volgen telkens vier zuurstoflagen. De kleine metaalionen bevinden zich in de holten tussen de zuurstofionen. Evenals bij de spinelstructuur zijn dit hetzij tetraëderplaatsen, die door vier zuurstofionen zijn omringd, hetzij octaëderplaatsen, die door zes zuurstofionen zijn omringd. Daarnaast komt bij **M** en **W** nog een metaalion voor, in de Ba-houdende laag, op een plaats die door vijf zuurstofionen is omringd. Met behulp van *fig. 9* kunnen we een inzicht in deze structuren krijgen. Hierin is een doorsnede gegeven door een spiegelvlak van de structuren. De doorsnede strekt zich in de *c*-richting niet over de gehele lengte van de elementaire cel uit, maar over een gedeelte hiervan, een zg. „structuureenheid". Uit deze „structuureenheden" of „blok-

[11]) P. B. Braun, Crystal structures of a new group of ferromagnetic materials, Philips Res. Rep., verschijnt binnenkort.

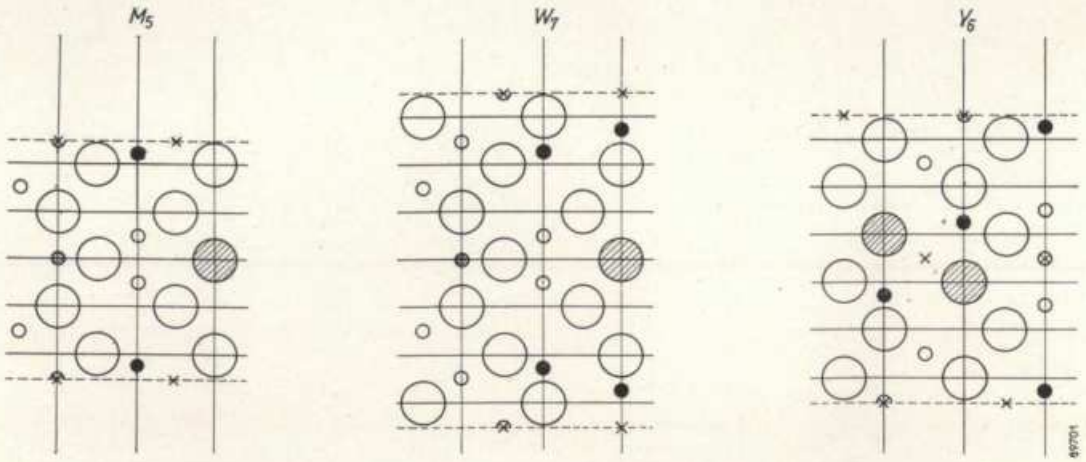

Fig. 9. Doorsnede door een spiegelvlak van de „structuureenheden" of „blokken" M_5, W_7 en Y_6. De kruisjes stellen symmetriecentra voor, de verticale lijnen zijn assen van drietallige symmetrie. Alle atomen die niet op een van deze assen liggen, komen daardoor in ieder blok drie maal voor. Men kan de volledige ruimtelijke opbouw van een blok verkrijgen door de hier getekende doorsnede b.v. om de middelste symmetrie-as 120° naar voren en 120° naar achteren uit het vlak te draaien. Op deze wijze ontstaan de in de tekst genoemde lagen van vier grote ionen van zuurstof (◯) resp. barium (◉). Deze lagen zijn door horizontale lijnen aangeduid. De kleine zwarte cirkels stellen metaalionen (Me) op tetraëderplaatsen voor, de kleine witte cirkels zijn metaalionen op octaëderplaatsen en de kleine gearceerde cirkels geven de metaalionen weer die door vijf zuurstofionen omringd zijn.

Men kan in de figuur nagaan dat de eerder vermelde chemische formules voor **M**, **W** en **Y** inderdaad het aantal atomen bevatten van resp. een M_5-, een W_7- en een Y_6-blok.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

ken" van resp. vijf, zeven en zes lagen, die we M_5-, W_7- en Y_6-blokken genoemd hebben, kunnen we de elementaire cellen van **M**, **W**, **Y** en ook van **Z** opbouwen, op de volgende wijze.

De elementaire cellen van **M**, **W**, en **Y** ontstaan door resp. twee M_5-, twee W_7- en drie Y_6-blokken op elkaar te stapelen. Hierbij moeten de blokken zo gedraaid worden dat de in fig. 9 aangegeven kruisjes symmetriecentra worden. Door het blok Y_6, zoals het hier getekend is, op het blok M_5 te plaatsen, krijgen we een blok dat we Z_{11} noemen. Twee Z_{11}-blokken vormen dan de elementaire cel van **Z**, als men deze aaneenvoegt met inachtneming van de symmetriecentra in één der grenslagen van deze blokken. Ten slotte kan nog worden opgemerkt dat het W_7-blok ook kan worden opgevat als een stapeling van een M_5-blok met twee lagen van de S-samenstelling.

In *tabel IV* zijn de voornaamste hier vermelde feiten verkort samengevat.

Tabel IV. De chemische formules en enkele kristallografische eigenschappen van de besproken hexagonale ferromagnetische verbindingen.

Verbinding	Formule	Elementaire cel		
		a-as in Å	*c*-as in Å	bouw
M	$BaFe_{12}O_{19}$	5,9	23,3	$2\ M_5$
W	$BaMe_2Fe_{16}O_{27}$	5,9	32,8	$2\ W_7 = 2\ (M + 2\ S)$
Y	$Ba_2Me_2Fe_{12}O_{22}$	5,9	43,5	$3\ Y_6$
Z	$Ba_3Me_2Fe_{24}O_{41}$	5,9	56,0	$2\ (M_5 + Y_6)$

In goede overeenstemming met de beschreven structuren zijn de gemeten verzadigingsmagnetisaties van de nieuwe verbindingen. Néel heeft aangetoond [12]) dat bij ferromagnetische oxydes met spinelstructuur (de S-verbindingen) de magnetische momenten van de verschillende ionen in twee groepen uiteenvallen. De momenten in één groep hebben onderling dezelfde richting, maar staan tegengesteld aan de momenten van de andere groep (zie b.v. [1])). Het totale magnetische moment is dan gelijk aan het verschil van de resulterende magnetische momenten in beide groepen. Dit z.g. ferrimagnetisme is ook gevonden bij de verbinding **M** en blijkt eveneens op te treden bij de verbindingen van de **W**-, **Y**- en **Z**-groep. Evenals bij de S-verbindingen hangt het totale magnetische moment af van de ionen die men voor Me substitueert. Uit de metingen blijkt nu, dat het magnetische moment per grammolecule van een bepaalde **Z**-verbinding gelijk is aan de som van de momenten per grammolecule van de overeenkomstige **Y**-verbinding en van **M**. De magnetisatie kan men dus berekenen met behulp van de formule:

$$Z_{11} = M_5 + Y_6,$$

die ook de opbouw der Z_{11}-blokken beschrijft. We vonden eveneens, dat de magnetisatie per grammolecule van een bepaalde **W**-verbinding in het algemeen gelijk is aan die van **M**, vermeerderd met de magnetisatie van twee grammoleculen van het overeenkomstige S-materiaal, dus

$$W_7 = M_5 + 2S,$$

in overeenstemming met de beschreven bouw van het W_7-blok.

Het is een gelukkige omstandigheid dat de momenten van de blokken bij het opbouwen van de elementaire cellen parallel en niet antiparallel komen te staan. Hierdoor hebben de verbindingen **W**, **Y** en **Z** verzadigingsmagnetisaties welke met die der ferroxcubesoorten vergelijkbaar zijn.

Samenvatting. Beschrijving van een aantal nieuwe ferromagnetische materialen met technisch belangrijke eigenschappen. Deze materialen zijn verbindingen van BaO, Fe_2O_3 en MeO; hierin betekent Me een tweewaardig ion of een mengsel van tweewaardige ionen uit de reeks Mn, Fe, Co, Ni, Zn, Mg. Zij kunnen langs keramische weg worden bereid en tonen wat de kristalstructuur betreft verwantschap met ferroxdure. De chemische formules en de kristalstructuren worden nader besproken. De kristalstructuren zijn hexagonaal en kunnen beschreven worden als dichtste bolstapelingen van zuurstoflagen loodrecht op de *c*-as, waarbij op bepaalde plaatsen een zuurstofion door een bariumion is vervangen. In de holten tussen de zuurstofionen bevinden zich de kleine metaalionen. Uit een aantal „structuureenheden" of „blokken" kan de elementaire cel van alle nieuwe verbindingen worden opgebouwd.

Sommige van deze materialen vertonen evenals ferroxdure een voorkeursrichting voor de magnetisatie, die parallel is aan de *c*-as. Bij andere, waarvoor de soortnaam ferroxplana wordt voorgesteld, is dit juist een „afkeers"-richting; de magnetisatie heeft hier een voorkeursvlak, dat loodrecht op de *c*-as staat. In dit vlak is de magnetisatie betrekkelijk gemakkelijk draaibaar, zodat deze materialen een permeabiliteit van omstreeks 10 kunnen bezitten, ongeveer gelijk aan de permeabiliteit die het kubische nikkelferriet, ferroxcube 4E, bezit tot frequenties van de orde van 100 MHz. De aanwezigheid van het voorkeursvlak heeft tot gevolg dat de ferromagnetische resonantiefrequentie voor ferroxplana veel hoger is dan voor ferroxcube. De nieuwe stoffen kunnen daardoor als magnetisch zacht materiaal worden toegepast tot een aanzienlijk (b.v. 5×) hogere frequentie dan ferroxcube 4E.

[12]) L. Néel, Ann. Physique **3**, 137-198, 1948.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

HET AFSMELTEN VAN AMPULLEN MET GELYOFILISEERD VACCIN

De foto toont het onder hoogvacuüm afsmelten by N.V. Philips-Roxane van ampullen met gelyofiliseerd vaccin, d.i. vaccin dat in ampullen bevroren is en in deze toestand in vacuo is gedroogd. Deze vaccins worden zowel in de humaan-medische als in de veterinaire praktijk gebruikt.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

TELBUIZEN VOOR RÖNTGENSTRALEN

door P. H. DOWLING *), C. F. HENDEE *), T. R. KOHLER *) en W. PARRISH *).

621.387.4:545.824:548.734

Geigertellers, proportionele tellers en scintillatietellers spelen al enige tientallen jaren een zeer belangrijke rol als stralingsdetectoren in de kernfysica en op aanverwante gebieden. Alle drie soorten tellers, het eerst de geigerteller, sinds enkele jaren ook de beide andere, hebben eveneens toepassing gevonden op het gebied van de zachte röntgenstralen. Voor de onderzoeker, die de mogelijkheid heeft om vrij tussen de drie soorten tellers te kiezen, is het van belang hun merites en hun beperkingen voor verschillende toepassingen te kennen. In dit artikel worden de drie soorten telbuizen vergeleken op grond van hun fysische eigenschappen en van praktische metingen onder uiteenlopende omstandigheden **).

Inleiding

Ongeveer 15 jaar geleden werden geigertellers, die geschikt waren gemaakt om betrekkelijk zachte röntgenstralen te meten, in het algemene röntgendiffractiewerk geïntroduceerd ter vervanging van de fotografische film. Het belangrijkste voordeel van de telbuis voor dit werk, vergeleken bij de film, is het gemak waarmee relatieve stralingsintensiteiten kunnen worden bepaald. Dit heeft tot de ontwikkeling van de methode der diffractometrie en daarmee verwante werkwijzen geleid. Wij verwijzen hier naar drie artikelen over dit onderwerp, die in de laatste tijd in dit tijdschrift zijn gepubliceerd [1] [2] [3]).

Na de ontwikkeling van de geigerteller voor het meten van röntgenstralen, heeft men in de laatste jaren ook de proportionele teller en de scintillatieteller voor hetzelfde doel aangewend [4]). In het Philipslaboratorium te Irvington zijn detectoren van deze soort met hun bijbehorende schakelingen speciaal voor de röntgendiffractometrie en de spectrochemische analyse met röntgenstralen ontwikkeld. De constructie werd zo gekozen dat de nieuwe tellers direct in de plaats van de geigerteller op de „Norelco" röntgengoniometer kunnen worden gezet. Elk van de drie aldus beschikbare detectoren heeft zijn speciale voordelen en natuurlijk ook beperkingen. In *fig. 1* zijn de drie telbuizen afgebeeld. In dit artikel zullen zij worden beschreven en het mechanisme van hun werking en hun belangrijkste eigenschappen zullen worden besproken.

De geigerteller

Hoewel de constructie van een geigerteller voor röntgenstralen reeds herhaaldelijk in dit tijdschrift ter sprake is gekomen, moge deze volledigheidshalve in het kort worden gerecapituleerd.

In *fig. 2* is een lengtedoorsnede weergegeven van de standaard „Norelco" geigertelbuis, type 62019. De buis bestaat uit een chroomijzeren katodecilinder van 2 cm diameter, langs de as waarvan een 0,75 mm dikke wolfraamdraad als anode is gemonteerd. De buis wordt gevuld met argon onder een druk van 55 cm Hg; een geringe hoeveelheid chloor (minder dan 0,4%) wordt als doofmiddel toegevoegd. Tussen katode en anode wordt een spanning van ongeveer 1400 V aangelegd. De röntgenstralen treden de buis in axiale richting binnen door een aan het eind aangebracht venster van 0,013 mm dik mica. Een röntgenquantum zal aanleiding tot een ontladingsstoot in de buis geven wanneer het door het gas binnen de actieve ruimte wordt geabsorbeerd. Deze ruimte is een om de anodedraad gelegen cilinder van ongeveer 10 cm lengte (vrijwel de gehele lengte van de buis) en 1,2 cm diameter. Meet men de Kα-straling van koper ($\lambda = 1{,}54$ Å, quanta met een energie van 8 keV) en is de stralenbundel niet breder dan de actieve ruimte, dan wordt ongeveer 60% van de röntgenquanta die op het buisvenster vallen, geteld. Dit percentage noemt

*) Philips Laboratories, Irvington-on-Hudson, N.Y., U.S.A.

) Het in dit artikel behandelde onderzoek is ten dele beschreven op het 3de Congres der International Union of Crystallography, Parijs, juli 1955. Zie ook Acta cryst. **7, 626, 1954.

[1]) W. Parrish, E. A. Hamacher en K. Lowitzsch, De „Norelco" röntgendiffractometer, Philips techn. T. **16**, 253-264, 1954.

[2]) W. Parrish, Meting van röntgenintensiteiten met telbuizen, Philips techn. T. **17**, 300-316, 1955 (no. 10).

[3]) W. Parrish, Spectrochemische analyse met röntgenstralen, Philips techn. T. **17**, 361-380, 1955 (no. 12).

[4]) Proportionele teller:
S. C. Currant, A. L. Cockroft en J. Angus, Phil. Mag. **40**, 36-52, 1949.
G. C. Hanna, D. H. W. Kirkwood en B. Pontecorvo, Phys. Rev. **75**, 985-986, 1949.
W. Bernstein, H. G. Brewer Jr. en W. Robinson, Nucleonics **6**, Febr. 1950, p. 39-45.
Scintillatieteller:
F. H. Marshall, J. W. Coltman en A. I. Bennett, Rev. sci. Instr. **19**, 744-770, 1948.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

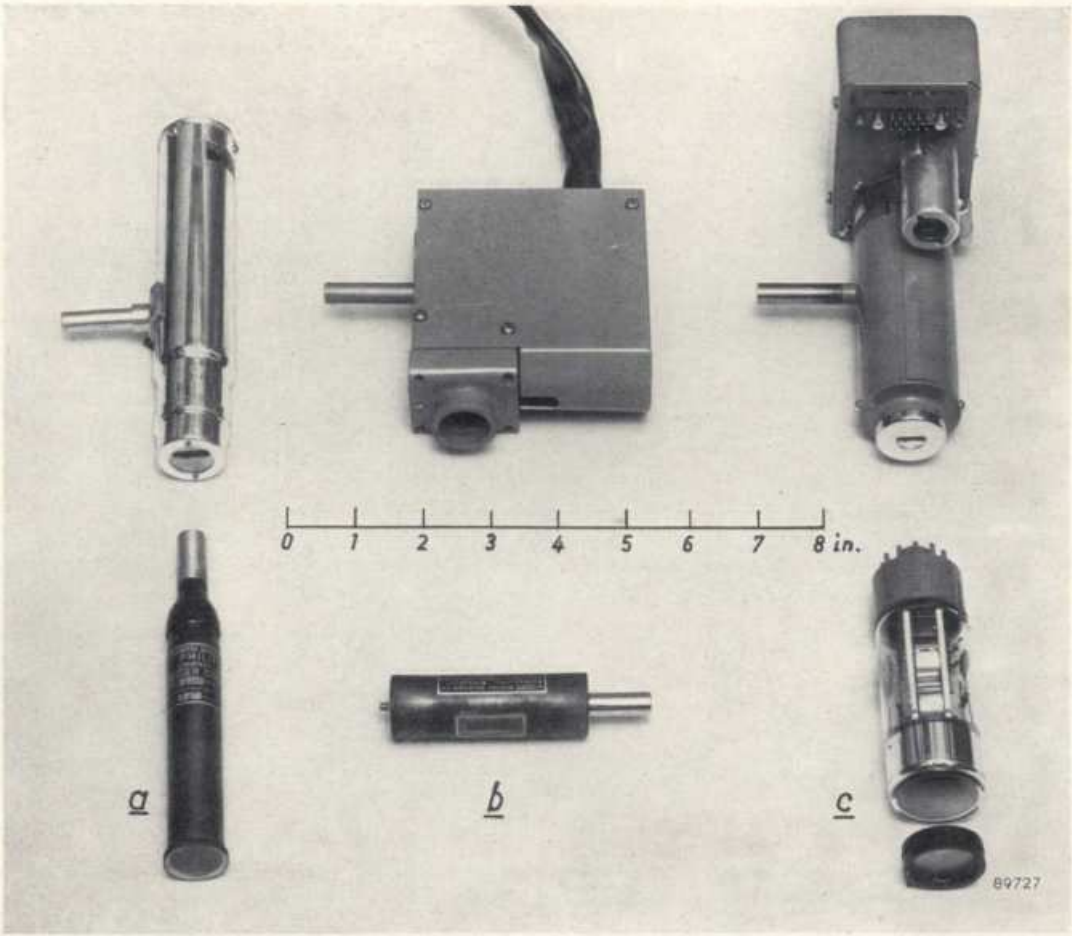

Fig. 1. Uitwisselbare röntgendetectoren voor de „Norelco" meetapparatuur. *a*) Geigerteller, type 62019, *b*) proportionele teller met xenonvulling, type 62031, *c*) scintillatieteller, type 52245.

Bij de proportionele en de scintillatieteller behoren anodebasisschakelingen, die samen met de telbuis op de goniometerarm worden gemonteerd. De complete detectoreenheden zijn bovenaan afgebeeld.

men het quantumtelrendement (quantum counting efficiency) van de telbuis.

Het quantumtelrendement is afhankelijk van de absorptie van de straling in de actieve gaszuil. Het rendement wordt nadelig beïnvloed door absorptie in het buisvenster en in het hierop aansluitende onwerkzame gedeelte van de gaszuil (dat echter in de buis type 62019 slechts ongeveer 0,3 cm lang is). Doordat zowel de gewenste als de ongewenste absorptie afhangen van de golflengte van de straling, hangt ook het quantumtelrendement sterk van de golflengte af. Voor praktische toepassingen is dit een zeer belangrijke factor, zoals hierna zal worden besproken. De uit absorptiegegevens berekende [5]) en door metingen bevestigde [6]) spectrale gevoeligheidskromme van de geigertelbuis type 62019 met argonvulling is in *fig. 3* weergegeven.

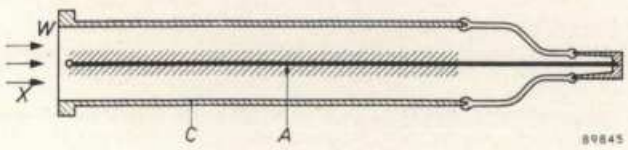

Fig. 2. Lengtedoorsnede van de „Norelco" geigertelbuis, type 62019. De buis wordt gevuld met argongas (55 cm Hg) en een geringe hoeveelheid chloor. Tussen de katode *C* en de anode *A* wordt een spanning van ongeveer 1400 volt aangelegd. Het toelaatbare gebied voor deze spanning (plateau) is meer dan 300 volt breed. Röntgenstralen (*X*) treden in axiale richting binnen door een eindvenster *W*; de werkzame ruimte in de buis is door arcering aangegeven. De nuttige levensduur van de buis is vrijwel onbeperkt: een buis van dit type die 10^9 quanta geteld had, toonde nog generlei achteruitgang in zijn eigenschappen.

Het mechanisme waardoor in een geigertelbuis een röntgenquantum wordt gedetecteerd, kan als

---

[5]) J. Taylor en W. Parrish, Rev. sci. Instr. **26**, 367-373, 1955 (no. 4).

[6]) W. Parrish en T. R. Kohler, Rev. sci. Instr., verschijnt binnenkort.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

volgt nader worden beschreven [7]). De absorptie van een quantum door een gasatoom heeft het uitwerpen van een foto-elektron ten gevolge. Het aldus ontstane gasion raakt in de meeste gevallen zijn energie-overschot kwijt door nog eens een of meer energierijke elektronen uit te zenden (inwendige omzetting

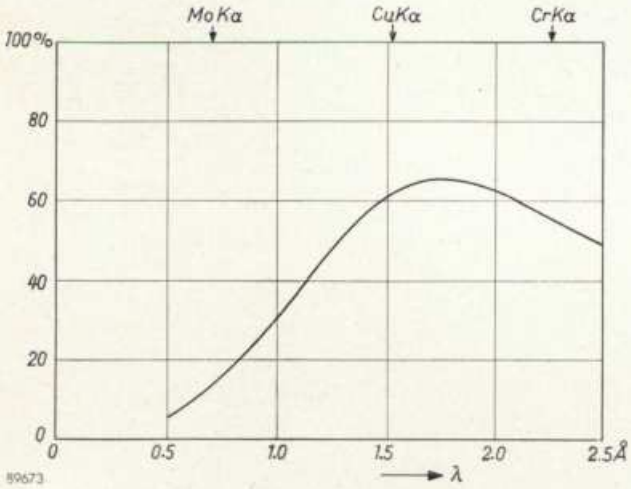

Fig. 3. Uit absorptiegegevens [5]) berekend quantumtelrendement van de met argon gevulde geigerteller als functie van de golflengte.

of conversie door het Auger-proces). Zowel deze conversie-elektronen als het foto-elektron geven hun kinetische energie af door ionenparen in het gas te vormen. Zo worden in argon door de absorptie van een CuKα-quantum in totaal ongeveer 310 ionenparen gevormd. Elk van de secundaire elektronen wordt in het elektrische veld van een telbuis versneld en geeft aanleiding tot een Townsend-lawine. Metastabiele atomen en fotonen, die door de lawines worden uitgezonden, maken overal in de buis nog meer elektronen vrij, zodat een zelfstandige ontlading tot stand komt, die het gehele volume van de buis vult. Na korte tijd wordt de ontlading gedoofd, hetzij door de werking van een uitwendige doofschakeling, die maakt dat de buisspanning daalt wanneer de ontladingsstroom wordt opgebouwd, hetzij door de werking van het doofmiddel dat aan het gas is toegevoegd (zelfdoving).

De laatstgenoemde werking kan als volgt worden verklaard. De ionisatie vindt grotendeels nabij de anodedraad plaats, waar de elektrische veldsterkte het grootst is. De geproduceerde elektronen worden snel naar de draad toe getrokken en laten rond de draad een ruimteladingsmantel van positieve ionen achter, die de elektrische veldsterkte in het gas aanzienlijk reduceert en tijdelijk een verdere ionisatie belet. De mantel van positieve ionen beweegt dan van de draad naar buiten, waardoor na een korte tijd („dode tijd") de oorspronkelijke veldverdeling wordt hersteld. De ontlading zou nu weer aan de gang kunnen gaan door andere elektronen, die door de wanden worden geëmitteerd; deze emissie echter wordt door het doofgas verhinderd.

Dank zij het bovenbeschreven proces van versterking door het gas worden ontladingsimpulsen van grote amplitude, b.v. 1-10 volt, verkregen. Door deze eigenschap was en is ook thans de geigerteller voor vele onderzoekingen waarbij een straling moet worden aangetoond, een uiterst nuttig hulpmiddel. De dode tijd echter beperkt zijn bruikbaarheid. Een ander quantum dat gedurende deze tijd de buis binnentreedt, kan geen afzonderlijke impuls doen ontstaan en wordt derhalve niet gedetecteerd. Een zekere fractie van de ontvangen quanta wordt daardoor niet geteld, en deze fractie neemt met het aantal per tijdseenheid arriverende quanta toe; de meting wordt dus bij grote stralingsintensiteiten niet-lineair. De dode tijd van de geigertelbuis type 62019 is 170 μsec; de „effectieve" dode tijd voor CuKα-straling die wordt opgewekt door een röntgenbuis gevoed met dubbelfazig gelijkgerichte spanning van 35 kV_p, is 270 μsec [8]), zodat reeds bij telfrequenties van 500 impulsen per seconde aanzienlijke afwijkingen van de lineariteit ($> 8\%$) optreden. Afzonderlijke intensiteitswaarden (topintensiteiten van diffractielijnen) kan men voor de niet-lineariteit corrigeren. Een correctie is echter in de praktijk onmogelijk als men het aantal quanta meet gedurende een periode waarin de stralingsintensiteit varieert, zoals b.v. bij de meting van geïntegreerde lijnintensiteiten [9]).

De proportionele teller

De grote amplitude der impulsen en de lange onwerkzame tijd van de geigertelbuis zijn beide daaraan te danken dat de ontlading zich tot het gehele volume van de buis uitbreidt. Bij de proportionele teller, die in principe eender is geconstrueerd als de geigertelbuis, kiest men de buisspanning beneden de drempelwaarde voor de zelfstandige ontlading (dat is de onderste grens van het

[7]) Zie b.v. D. H. Wilkinson, Ionization chambers and counters, Univ. Press, Cambridge 1950. Ook N. Warmoltz, Philips techn. T. **13**, 259-270, 1951. — Er zij op gewezen dat in geigertellers die als detectoren voor kernfysische experimenten worden gebruikt en waarbij β-stralen of zeer harde röntgenstralen (γ-quanta met een energie van millioenen eV) moeten worden gemeten, het mechanisme enigszins anders is: in deze gevallen worden de quanta niet in het gas maar in de katode of in de anode geabsorbeerd, en wel meestal slechts een geringe fractie ervan. De opbouw van een ontlading verloopt op dezelfde wijze als in de beschreven detector voor zachte röntgenstralen.

[8]) L.c. [2]), blz. 313.
[9]) L.c. [2]), blz. 312.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

geigerplateau). De ontlading blijft dan in hoofdzaak beperkt tot een vlak loodrecht op de as van de buis, ter plaatse waar het oorspronkelijke röntgenquantum werd geabsorbeerd. De ontladingsstroom is in dit geval slechts de som van de Townsend-lawines van de secundaire elektronen. Terwijl in de geigertelbuis de gasversterkingsfactor 10^6 of 10^7 kan bedragen, is hij nu niet groter dan 10^4, en de opgewekte impulsen zijn betrekkelijk klein. Dank zij de beperkte omvang van de ontlading blijft echter vrijwel het gehele volume van de buis werkzaam, en deze kan een tweede röntgenquantum dat zeer kort na het eerste wordt geabsorbeerd, detecteren. Twee quanta behoeven slechts 0,02 μsec, dat is de tijd nodig voor een secundair elektron om zich naar de anodedraad te begeven, na elkaar te arriveren om afzonderlijk te worden geteld. Gebruikt men de gemiddelde stroom door de telbuis als een maat voor het aantal per tijdseenheid arriverende quanta, dan is het zelfs niet nodig dat afzonderlijke impulsen optreden; de lineariteit blijft in dat geval tot buitengewoon hoge telfrequenties, b.v. 10^7 impulsen per seconde of nog meer, gehandhaafd. (Bij nog hogere telfrequenties verlaagt de toenemende ruimtelading de werkzame veldsterkte.)

Aangezien de impulsen die de proportionele teller levert, ongeveer 10^3 maal kleiner zijn dan die van de geigerteller, moet een versterker met een versterkingsfactor van ongeveer 10^3 worden toegevoegd om de impulsen op het peil te brengen dat voor het functioneren van de telschakeling nodig is (ongeveer 0,25 volt). Dit is de prijs die voor de betere lineariteit moet worden betaald.

Een bekende eigenschap van de proportionele teller, waaraan hij ook zijn naam dankt, is de proportionaliteit tussen de impulsamplitude en de energie van het geabsorbeerde quantum. Terwijl immers bij de geigerteller de oorspronkelijke quanta alleen een ontsteking bewerkstelligen en de ontstane impulsen slechts weinig in grootte variëren, bevat ieder der impulsen die de proportionele teller levert, een lading die op een constante factor na (de gasversterkingsfactor) gelijk is aan de ionisatie die door het geabsorbeerde quantum werd teweeggebracht, en is dus in grootte evenredig met de quantumenergie. Deze evenredigheid is een zeer nuttige eigenschap, daar zij het mogelijk maakt ongewenste bestanddelen van de straling door toepassing van impulshoogtediscriminatie te elimineren. Op dit punt komen we hieronder uitvoerig te spreken.

De proportionele teller van fig. 1 is in *fig. 4* in doorsnede weergegeven. De buis bevat een venster van 0,013 mm dik mica ter grootte van 0,6 × 1,6 cm, dat opzij in de katodecilinder is aangebracht. De röntgenbundel treedt dus in een richting loodrecht op de anodedraad binnen. Deze constructie is terwille van de zo juist genoemde evenredigheid gekozen: ten einde voor alle quanta de gasversterkingsfactor zo veel mogelijk gelijk te maken, moet men

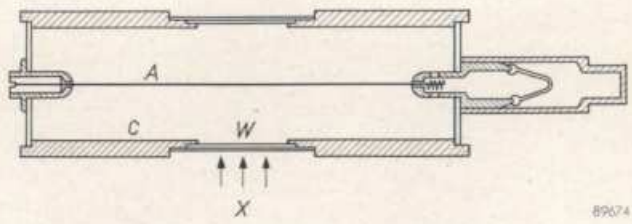

Fig. 4. Lengtedoorsnede van de proportionele teller „Norelco" type 62031. *A* anode, *C* cilindrische katode. Deze teller wordt met xenon gevuld (32 cm Hg); ter begrenzing van de ontladingen is een geringe hoeveelheid methaan toegevoegd. Er wordt een spanning van ongeveer 1700 V aangelegd; de vereiste waarde hangt nog af van de te meten straling. Röntgenstralen (*X*) treden binnen door een opzij aangebracht venster *W*. Niet-geabsorbeerde quanta verlaten de buis weer door een diametraal tegenovergelegen venster. (Niet alle proportionele tellers zijn van een dergelijk uittreevenster voorzien.)

zorgen dat de ruimtelijke verdeling van het elektrische veld voor alle quanta dezelfde is, ongeacht de plaats waar zij worden geabsorbeerd. Aan beide einden van de cilindrische buis treden onvermijdelijk vrij grote vervormingen van de equipotentiaaloppervlakken op. Door de constructie met een zijvenster blijven deze einden buiten gebruik. Om zo goed mogelijk zeker te zijn van een uniforme veldverdeling in de buurt van het venster, is de lengte van de „Norelco" buizen gelijk aan 4× hun diameter gemaakt. Een storing door het micavenster zelf wordt vermeden door dit aan de binnenzijde te bedekken met een zeer dun laagje van opgestoven goud of met een dun foelie van beryllium. In sommige buizen wordt diametraal tegenovergesteld aan het intreevenster een uittreevenster ter grootte van 0,8 × 1,7 cm aangebracht, om het niet-geabsorbeerde gedeelte van de röntgenstralenbundel uit de buis te laten treden zonder dat deze de chroomijzeren cilindrische katode raakt en hierin eventueel röntgenfluorescentiestraling opwekt.

Natuurlijk moet het gedeelte van de bundel dat niet wordt geabsorbeerd, liefst zo klein mogelijk zijn. Dit was juist de reden waarom bij de ontwikkeling van de diffractometrie de met argon gevulde geigertelbuis, die de röntgenstralen moest detecteren, van een venster aan het einde werd voorzien, zodat een lange actieve gaszuil werd verkregen. De geringere lengte van de absorptieweg in de constructie met zijvenster compenseert men door een zwaarder gas te kiezen, in de meeste gevallen xenon. De proportionele teller type 62032, die met zuiver xenon onder een druk van 32 cm Hg is gevuld, heeft

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

nagenoeg hetzelfde quantumtelrendement voor CuKα als de geigertelbuis 62019. De beide buizen hebben zelfs in het gehele spectrale gebied tussen ongeveer 0,5 en 2,5 Å vrijwel hetzelfde rendement, zie *fig. 5*. Hogere gasdrukken zijn niet gewenst, aangezien de vereiste spanning op de telbuis snel met de druk toeneemt en groter zou worden dan met het „Norelco"-voedingsapparaat kan worden verkregen.

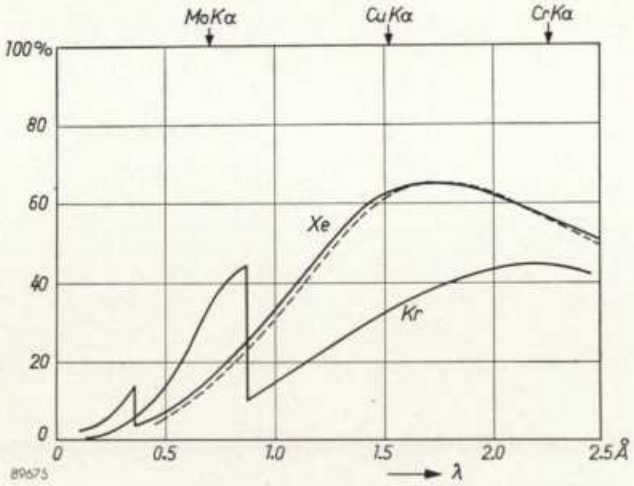

Fig. 5. Uit absorptiegegevens [5]) berekende spectrale gevoeligheidskromme van de proportionele teller gevuld met xenon (kromme *Xe*) of met krypton (kromme *Kr*). De gestippelde lijn is de spectrale gevoeligheidskromme van de geigerteller uit fig. 3.

Voert men de gasversterkingsfactor waarmee de telbuis werkt, hoog genoeg op, dan kan er een onafgebroken ontlading ontstaan. Bovendien treden, reeds vóór het zover komt, na iedere normale röntgenimpuls trillingen op, die zich ook als impulsen voordoen. De relatieve amplitudes van deze „na-impulsen" nemen met de spanning toe en kunnen eventueel groot genoeg zijn om de deelschakeling er op te doen aanspreken, zodat de gemeten telfrequentie vervalst wordt. Het is daarom noodzakelijk de gasversterkingsfactor beneden een zekere waarde te houden. Volgens onze ervaring dient daartoe de spanning op de telbuis zo gekozen te worden dat de verkregen röntgenimpulsen geen grotere amplitudes dan 1 mV krijgen. (Deze grens moet dan voor de energierijkste in de buis geabsorbeerde quanta in acht genoemen worden — ongeacht of deze tot de te meten of tot een ongewenste straling behoren —, aangezien de amplitude der na-impulsen met de quantumenergie toeneemt.) In de praktijk komt men aldus tot de noodzaak van een grote uitwendige versterking.

Het verschijnsel van de na-impulsen, en daarmee de complicaties die het gebruik van versterkers met grote versterkingsfactor meebrengt (vooral als impulshoogtediscriminatie wordt toegepast), kan men geheel vermijden door aan het edelgas in de proportionele teller methaan of een andere organische verbinding toe te voegen. Deze toevoegingen „doven" de ontlading, d.w.z. zij voorkomen secundaire processen en beperken zodoende de ontlading tot een enkele lawine. Bij de „zelfdovende" proportionele tellers („Norelco" type nr. 62031) kan men derhalve met grotere gasversterking werken, wat de apparatuur vereenvoudigt en het werken ermee vergemakkelijkt.

Aangezien de toegevoegde verbinding geleidelijk wordt ontleed, is de levensduur van dergelijke buizen beperkt, terwijl met zuiver gas gevulde telbuizen een buitengewoon lange levensduur hebben. Toch is de nuttige levensduur die men verkrijgt bij buizen met niet meer dan 10% methaan, voldoende voor alle praktische gevallen (ten minste een of twee jaar, bij normaal gebruik).

Er zijn ook proportionele tellers gevuld met krypton in gebruik, speciaal voor het aantonen van MoK-straling. De spectrale gevoeligheidskromme voor deze teller, die eveneens in fig. 5 is weergegeven, toont een beter quantumtelrendement dan de met xenon gevulde buis in het golflengtegebied beneden 0,8 Å, dank zij de KrK-absorptiekant. De veel geringere absorptie door het krypton wordt ten dele weer goedgemaakt doordat men de gasdruk tot 50 cm Hg opvoert.

Bij het detecteren van MoKα-straling met een proportionele teller met kryptonvulling treedt een verschijnsel naar voren dat bij metingen met impulshoogtediscriminatie zeer belangrijk wordt, nl. de „restpiek" (escape peak). Dit verschijnsel zal worden besproken in het hoofdstuk over de impulshoogtediscriminatie, waar ook het begrip van het „energetisch scheidend" vermogen zal worden ingevoerd. Aangezien zowel dit begrip als het verschijnsel van de restpiek eveneens van belang zijn voor de scintillatieteller, willen wij deze eerst nog bespreken.

De scintillatieteller

De scintillatieteller is samengesteld uit twee delen: een vlak, fluorescerend, eenkristal en een fotomultiplicatorbuis (*fig. 6*). Voor zachte röntgenstralen wordt meestal een NaJ-kristal gebruikt dat met Tl (1%) geactiveerd is. Een röntgenquantum dat door een atoom van het kristal wordt geabsorbeerd, produceert een foto-elektron en gewoonlijk een of meer Auger-elektronen, die op hun baan door het kristalrooster een groot aantal ter plaatse van Tl-ionen gelegen fluorescentiecentra aanslaan. Ieder aangeslagen fluorescentiecentrum kan een zichtbaar foton uitzenden. Het zo verkregen licht wordt op de katode van de fotomultiplicatorbuis

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

geconcentreerd door reflecterende oppervlakken om of op het kristal. Ruwweg wordt er door 10 van deze fotonen één elektron uit de katode vrijgemaakt. De fotomultiplicator heeft een secundaire-emissieversterkingsfactor van 10^5 tot 10^6 en levert een stroomimpuls die na verdere versterking geschikt is om de telschakeling te doen aanspreken.

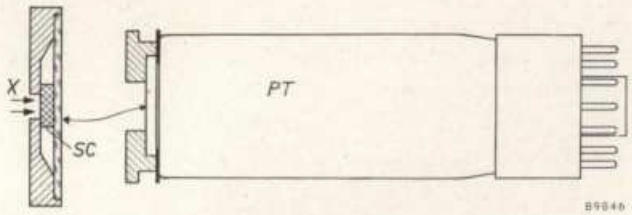

Fig. 6. Schematische voorstelling van de scintillatieteller, type 52245. Het scintillerende NaJ.Tl-kristal (*SC*) is gemonteerd in een lichtdichte houder, die aan de zijde van de fotomultiplicatorbuis (*PT*) voorzien is van een glazen deksel, dat het scintillatielicht doorlaat, en aan de andere zijde van een venster voor de röntgenstralen *X* (berylliumfoelie).

De bij zachte röntgenstralen aangepaste scintillatieteller heeft in twee opzichten soortgelijke eigenschappen als de proportionele teller: hij heeft een buitengewoon korte dode tijd (ca. 0,2 μsec), waardoor lineaire metingen tot zeer grote intensiteiten mogelijk zijn; en zijn impulsamplitudes zijn evenredig met de quantumenergie, waardoor men de mogelijkheid van impulshoogtediscriminatie heeft. Het grote voordeel van de scintillatieteller ten opzichte van zowel de geigerteller als de proportionele teller is zijn hoge quantumtelrendement (bijna 100%) en het vlakke verloop van zijn spectrale gevoeligheidskromme in het golflengtegebied 0,2 - 2,5 Å. In *fig.* 7 is deze kromme voor een kristal van 1 mm dikte weergegeven. Het quantumtelrendement van bijna 100% is aan de vrijwel volledige absorptie der zachte röntgenstralen in het NaJ-kristal te danken [10]). Dank zij de zeer grote absorptiecoëfficiënt voor zachte röntgenstralen zouden nog veel dunnere kristallen kunnen worden gebruikt. De oppervlakte van het kristal behoeft slechts weinig groter te zijn dan de doorsnede van de röntgenstralenbundel.

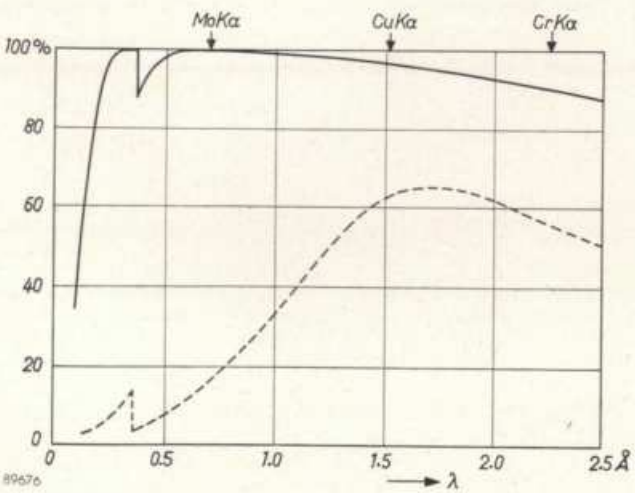

Fig. 7. Uit absorptiegegevens [5]) berekende spectrale gevoeligheidskromme van de scintillatieteller, type 52245, met NaJ.Tl-kristal. De gestippelde lijn is de gevoeligheidskromme voor de met xenon gevulde proportionele teller uit fig. 5.

Andere eigenschappen die het NaJ-kristal speciaal geschikt maken voor ons doel, zijn de volgende. Zijn spectrale emissiekromme past zeer goed bij de gevoeligheidskromme van de fotomultiplicatorbuis; het is optisch zeer doorzichtig; de uitsterfconstante van de fluorescentie is zeer klein, ongeveer 10^{-7} sec, waaraan de bovengenoemde zeer korte dode tijd te danken is; ten slotte kan men gemakkelijk NaJ-eenkristallen van voldoende grootte en gelijkmatige doorzichtigheid kweken. Het enige belangrijke nadeel van NaJ.Tl is, dat het buitengewoon hygroscopisch is. Het kristal wordt daarom luchtdicht in een aluminiumhouder opgesloten, die ook volkomen ondoorzichtig voor uitwendig zichtbaar licht is. Om de opvallende röntgenstralen zonder grote verzwakking binnen te laten, is de houder aan de voorkant voorzien van een vensteropening afgesloten met een berylliumplaatje ter dikte van 0,13 mm. De achterzijde van de houder is voorzien van een afsluiting met een vlakke glazen plaat en wordt stijf op het voorvlak van de fotomultiplicatorbuis geklemd, met ertussen een vloeistoflaagje van hoge brekingsindex (Dow Corning 200) om de reflectieverliezen zo klein mogelijk te houden. Om dezelfde reden worden de binnenoppervlakken van de houder en van het berylliumvenster goed gepolijst. Aangezien beryllium moeilijk te polijsten is, wordt dit venster soms aan de zijde van het kristal met een zeer dun (circa 1 μ) glanzend aluminiumfoelie bedekt. (We merken nog op dat lichtverliezen het quantumtelrendement niet benadelen, doch wel het energetisch scheidend vermogen verminderen; zie hieronder.)

De in fig. 7 zichtbare daling van de spectrale gevoeligheidskromme van de scintillatieteller naar kleine golflengten is daaraan te wijten dat de hardere röntgenstralen het dunne kristal doorlopen zonder te worden geabsorbeerd. De daling naar lange golven echter wordt veroorzaakt door de toenemende absorptie van het berylliumvenster. Men zou wel vensters kunnen maken die voor golflengten

[10]) In hun oorspronkelijk toepassingsgebied, de kernfysica, hebben scintillatietellers meestal een veel lager rendement, b.v. 1%. Men kan de kristallen namelijk niet overmatig groot maken, en in kristallen van nog redelijke afmetingen worden de harde kernstralingen slechts voor een zeer klein gedeelte geabsorbeerd.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

groter dan 3 Å beter doorzichtig zijn, maar voor zulke zeer zachte röntgenstralen is de scintillatieteller toch slechts moeilijk te gebruiken, aangezien de impulsen zeer klein worden en het moeilijk wordt ze te onderscheiden van de ruis die de fotomultiplicatorbuis opwekt.

Hieruit blijkt dat de fotomultiplicatorbuis geconstrueerd moet zijn voor een zeer geringe ruis (donkerstroom, die o.a. wordt veroorzaakt door lek langs oppervlakken, thermische en koude emissie, ionisatie van restgassen). Een koeling van de buis, ter beperking van de thermische emissie, helpt vaak weinig om de ruis te verminderen, daar in vele fotomultiplicatorbuizen de grootste en derhalve meest storende ruisimpulsen afkomstig zijn van de ionisatie van gassen. Andere eigenschappen van de fotomultiplicator, zoals de elektronenopbrengst per opvallend zichtbaar foton en de totale elektronenversterking, werden hierboven reeds genoemd. Bij de in aanmerking komende types van fotomultiplicatorbuizen heeft men anodespanningen van 850 tot 1400 V nodig. Bij de in fig. 1 afgebeelde scintillatieteller behoort een versterker met een versterkingsfactor van 250 tot 1000, naar gelang van de toegepaste spanning op de fotomultiplicatorbuis. De nuttige levensduur van de scintillatieteller is vrijwel onbeperkt.

Impulshoogtediscriminatie

Het oogmerk van de impulshoogtediscriminatie zoals deze in de röntgendiffractometrie en in de spectrochemische analyse met röntgenstralen wordt toegepast, is het meten van straling van een enkele golflengte, nl. een bepaalde diffractielijn of een bepaalde emissielijn, terwijl straling met andere golflengten wordt uitgeschakeld [11]). De van een proportionele of scintillatieteller afkomstige impulsen worden via een lineaire versterker (waarvan de uitgangsimpuls dus evenredig is met de ingangsimpuls) met regelbare versterkingsfactor toegevoerd aan een impulshoogteanalysator met een enkel kanaal. De analysator kan zo worden ingesteld dat hij alle impulsen doorlaat waarvan de amplitude een zekere waarde overtreft (basis), of alleen die impulsen waarvan de amplitudes binnen twee bepaalde, vrij dicht bij elkaar gelegen grenzen vallen (venster). De impulsen die de analysator doorgelaten heeft, voert men aan een registrerende telfrequentiemeter toe [2]).

Een goed voorbeeld om het nut van impulshoogtediscriminatie te illustreren, is de diffractometrie van radioactieve preparaten [12]). Doordat men in de diffractometrie een vrij groot preparaat nodig heeft, wordt de detector bij het onderzoek van een radioactief preparaat aan een zeer sterke achtergrondstraling blootgesteld. Men kan de detector met lood afschermen (en dan voor het aftasten van het diffractiediagram de röntgenbuis bewegen in plaats van de detector met zijn zware afschermmantel), maar dit is een omslachtige oplossing. Wordt echter een scintillatieteller of proportionele teller toegepast, dan heeft de grote meerderheid der impulsen die door de β- of γ-stralen worden opgewekt, andere amplitudes (zowel grotere als kleinere) dan diegene die door de afgebogen röntgenstralen worden teweeggebracht. Zij kunnen derhalve voor het grootste gedeelte worden geëlimineerd door een impulshoogtediscriminator te gebruiken, waarvan het venster is ingesteld op de energie (golflengte) van de diffractielijn waarvan men de intensiteit meet.

Energetisch scheidend vermogen van verschillende detectoren

Meet men een bepaalde straling en registreert men de telfrequentie terwijl men de bovenste en de onderste amplitudegrens van het analysatorvenster continu laat opschuiven (waarbij men de breedte van het venster constant houdt), dan krijgt men een grafiek van de impulshoogteverdeling van de impulsen van de detector. *Fig. 8* geeft de impulshoogteverdelingskromme voor drie soorten detectoren, die blootgesteld werden aan een monochromatische straling (CuKα-straling, die impulsen van 10 V opwekt), bij meting met een venster van

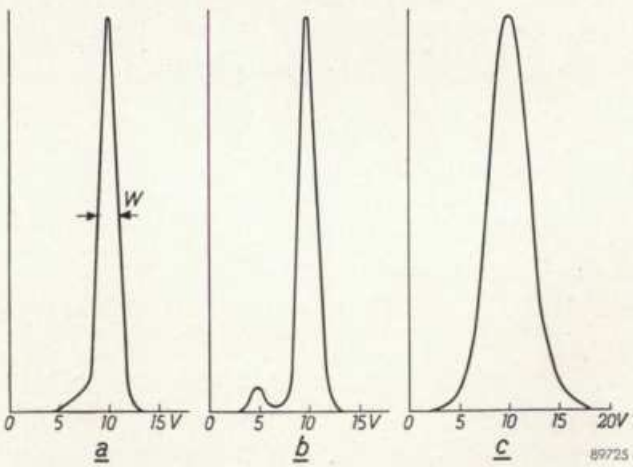

Fig. 8. Impulshoogteverdeling van de impulsen die door CuKα-straling worden opgewekt in *a*) de proportionele teller met kryptonvulling, *b*) de proportionele teller met xenonvulling, *c*) de scintillatieteller.

[11]) Op de algemene methodes voor impulshoogteanalyse en op de hiervoor toegepaste apparaten kunnen we in dit artikel niet ingaan. Zie b.v. A. B. van Rennes, Pulse-amplitude analysis in nuclear research, Nucleonics **10**, juli 1952, 20-27 en **10**, augustus 1952, 22-28. Zie ook [6]).

[12]) D. J. Knowles, 10th Pittsburgh Conf. X-ray Electr. Diffr. 1952, p. 32; T. R. Kohler en W. Parrish, X-ray diffractometry of radioactive samples, Rev. sci. Instr. **26**, 374-379, 1955 (no. 4).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

0,5 V breedte. Elke kromme vertoont een piek die een zekere breedte bezit, hetgeen betekent dat quanta die één bepaalde energie bezitten (i.c. 8 keV), impulsen opwekken met uiteenlopende amplitudes, rondom een zekere gemiddelde waarde. De laatstgenoemde beantwoordt aan de werkelijke quantumenergie. De spreiding, die het vermogen van de detector om quanta van dicht bijeen gelegen golflengten te scheiden beperkt, is te wijten aan het statistische karakter der betrokken ionisatie- of aanslag- en versterkingsprocessen. Het „energetisch scheidend vermogen" (dat men natuurlijk niet verbeteren kan door het venster van de analysator smaller te maken) wordt aangegeven door W/A, waarbij W de op halve piekhoogte gemeten breedte van de impulshoogteverdelingskromme is en A de gemiddelde impulsamplitude (ruwweg de abscis van het midden van de piek).

In fig. 8 ziet men dat de met xenon of krypton gevulde proportionele teller een veel beter energetisch scheidend vermogen W/A voor CuKα-straling heeft dan de scintillatieteller. Dit kan als volgt worden begrepen. Een CuKα-quantum produceert in de met xenon gevulde proportionele teller een gemiddeld aantal m van 350 ionenparen. Door fluctuaties van m en van de gasversterkingsfactor voor elk elektron schommelt de resulterende impulsamplitude met een relatieve standaardafwijking σ/A, die, zoals men kan aantonen [13]), bij benadering $\sqrt{1/m}$ bedraagt. Met behulp van de betrekking $W = 2{,}36\ \sigma$ berekent men dat voor $m = 350$ de verhouding $W/A \approx 13\%$ wordt. In de praktijk meet men bij tellers uit de serieproduktie waarden van ongeveer 20% (het verschil is waarschijnlijk toe te schrijven aan ongelijkmatigheden van de anodedraad en aan geringe asymmetrieën in de centrering hiervan, waardoor de gasversterking grotere fluctuaties vertoont). Bij de scintillatieteller brengt een CuKα-quantum ongeveer 500 zichtbare fotonen in het NaJ.Tl-kristal voort [14]), maar slechts ongeveer $n = 25$ van deze fotonen produceren een „elektronenlawine" in de fotomultiplicatorbuis. (De overige fotonen slagen hier niet in, hetzij doordat zij niet op de fotokatode vallen of hieruit geen elektron vrijmaken, of doordat het vrijgemaakte elektron de eerste dynode niet bereikt, of ten gevolge van fluctuaties in de secundaire emissie van de dynodes [15])). De relatieve standaardafwijking is weer $\sigma/A = 1/\sqrt{n} = 1/\sqrt{25}$, zodat $W/A = 2{,}36\ \sigma/A \approx 47\%$. De verhouding W/A is dus voor de scintillatieteller in dit voorbeeld ongeveer 2,5 maal zo groot, het energetisch scheidend vermogen ongeveer 2,5 maal zo klein als dat van de proportionele teller. Op het ogenblik lijkt het niet waarschijnlijk dat men het energetisch scheidend vermogen van deze beide detectoren aanzienlijk zal kunnen verbeteren.

Uit de betrekkingen $W \sim 1/\sqrt{m}$ en $W \sim 1/\sqrt{n}$, die hierboven impliciet voorkwamen, ziet men dat bij beide detectoren $W/A \sim 1/\sqrt{A}$: het energetisch scheidend vermogen neemt toe met de wortel uit de quantumenergie van de gedetecteerde straling (d.w.z. — binnen voor de hand liggende grenzen — omgekeerd evenredig met de wortel uit de golflengte).

Is de samenstelling van de te meten straling en de impulshoogteverdelingskromme van de detector niet bekend, dan kan men de gewenste instelling van het venster van de impulshoogteanalysator snel bepalen door alleen de basis van de analysator te gebruiken (d.w.z. de bovenste begrenzing van het venster buiten werking te stellen, zie boven) en een registratie te maken waarbij de basis synchroon met de registreerstrook wordt opgeschoven. Men krijgt dan een zg. integraalkromme (per seconde optredend aantal impulsen met een amplitude groter dan de abscis). *Fig. 9* geeft de integraalkrommen die met CuKα-straling voor dezelfde drie detectoren als in fig. 8 werden verkregen.

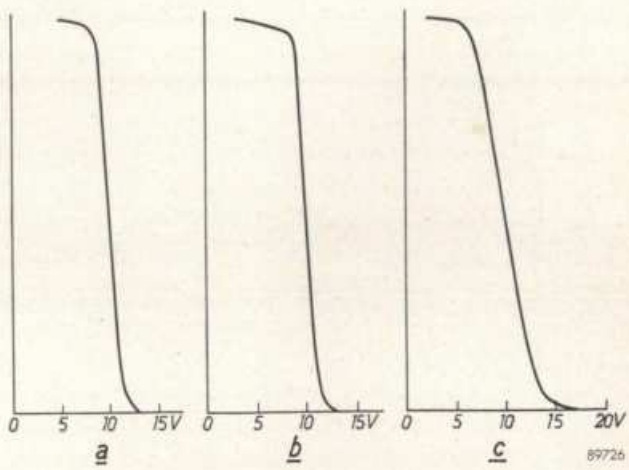

Fig. 9. Integraalkromme van dezelfde impulsen als in fig. 8. De ordinaat van iedere kromme geeft het aantal impulsen per seconde aan dat een amplitude heeft groter dan de spanningswaarde die op de abscis is uitgezet.

[13]) U. Fano, Phys. Rev. **72**, 26, 1947; O. R. Frisch (ongepubliceerd).
S. C. Curran, A. L. Cockroft en J. Angus, Phil. Mag. **40**, 929, 1949.

[14]) Ongeveer 20% van de quantumenergie wordt in zichtbaar licht omgezet. De golflengte van het röntgenquantum is 1,54 Å, de gemiddelde golflengte van het geëmitteerde zichtbare licht is 4100 Å, zodat het aantal zichtbare fotonen per röntgenquantum wordt $0{,}2 \times 4100/1{,}54 \approx 500$. — Het is misschien niet overbodig erop te wijzen dat de beperkte energie-omzettingscoëfficiënt (20%) evenmin als verliezen van het geproduceerde zichtbare licht afbreuk doet aan de eerder vermelde waarde van bijna 100% van het quantumtelrendement van de scintillatieteller voor CuKα: vrijwel ieder geabsorbeerd quantum wordt geteld, ongeacht het feit dat een groot gedeelte van zijn energie in het kristal verloren kan gaan.

[15]) G. A. Morton, RCA Review **10**, 525-555, 1949.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De restpiek

De primaire gebeurtenis bij de absorptie van een röntgenquantum door alle beschouwde telbuizen is het uitwerpen van een elektron uit een der binnenste schillen van een atoom van het gas of van het kristal. Is de golflengte van het geabsorbeerde quantum kleiner dan die van de K-absorptiekant van het atoom, dan zal het genoemde foto-elektron uit de K-schil worden geworpen. De nu volgende overgang van een elektron uit de L-schil naar de open plaats in de K-schil gaat gepaard hetzij met het uitwerpen van één of nog meer verdere elektronen (Auger-proces) of met de emissie van een nieuw röntgenquantum (fluorescentie). Hierboven werd vermeld dat de Auger-elektronen evenals het foto-elektron ten slotte in het gas of in het kristal worden geabsorbeerd en zodoende bijdragen tot de vorming van ionenparen resp. tot de aanslag van fluorescentiecentra. Het röntgenquantum daarentegen, dat in het geval van fluorescentie wordt uitgezonden, heeft een vrij goede kans uit het gas of het kristal te ontsnappen, vooral aangezien zijn golflengte altijd iets groter is dan die van de absorptiekant en de absorptiecoëfficiënt voor deze quanta dus betrekkelijk klein is (zie fig. 5 en 7). Voor de geigerteller doet het er niet veel toe als een groot gedeelte van de oorspronkelijke energie E_i van het quantum erin slaagt als fluorescerende energie E_f te ontsnappen. Voor de proportionele teller en de scintillatieteller echter heeft het ontsnappen van de fluorescentiestraling het ongewenste gevolg dat sommige van de oorspronkelijke quanta impulsen met een „verkeerde" amplitude opwekken, nl. evenredig met $E_i - E_f$ in plaats van E_i. In de impulshoogteverdelingskromme voor monochromatische straling verschijnen dus twee pieken, de hoofdpiek (bij $V_i \sim E_i$) en de „restpiek" (escape peak, bij $V_e \sim E_i - E_f$).

In fig. 8*b* ziet men een kleine restpiek voor het geval van CuKα-straling die op een proportionele teller met xenonvulling valt. Een zeer grote restpiek — groter dan de hoofdpiek — vindt men als men MoKα-straling ($E_i = 17{,}4$ keV), meet met een proportionele teller die gevuld is met krypton (de ontsnappende KrKα-straling heeft $E_f = 12{,}6$ keV). Dit wordt geïllustreerd door *fig. 10*.

Het optreden van de restpiek is op twee manieren van invloed op praktische metingen met impulshoogtediscriminatie. Doordat men het analysatorvenster gewoonlijk zo nauw zal moeten instellen dat het geen impulsen van de restpiek doorlaat, wordt het quantumtelrendement enigszins verminderd. Het verlies zal in het geval van fig. 10 ongeveer 55% bedragen. Ten tweede is het niet te vermijden dat de analysator, die op impulsen van de hoofdpiek voor quanta E_i wordt ingesteld, ook impulsen van de restpiek van quanta $E_i + E_f$ doorlaat, indien zulke quanta aanwezig zijn; de discriminatie ten opzichte van ongewenste straling (b.v. een continue achtergrond) is derhalve onvolledig.

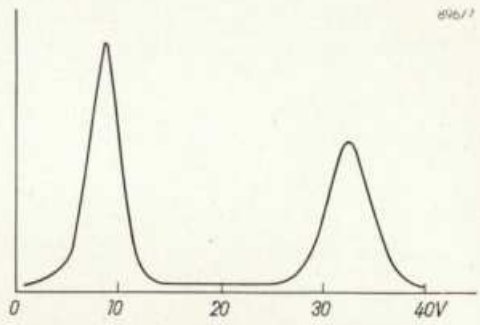

Fig. 10. Impulshoogteverdeling der impulsen die door MoKα-straling (quantumenergie $E_i = 17{,}4$ keV) worden geproduceerd in een proportionele teller met kryptonvulling. Een groep impulsen, die de hoofdpiek vormt, heeft amplitudes (gemiddelde waarde 32 V) die beantwoorden aan de ionisatie die door het foto-elektron en de Auger-elektronen in totaal wordt teweeggebracht. De amplitudes van de andere groep impulsen (gemiddelde waarde 9 V), die de „restpiek" (escape peak) vormt, beantwoordt aan de resterende ionisatie indien een deel van de energie van een quantum als fluorescentiestraling uit het kristal ontsnapt. Het amplitudeverschil tussen de impulsen van de hoofdpiek en de restpiek (23 V) wordt bepaald door de energie E_f van het ontsnapte fluorescerende röntgenquantum (KrKα, met $E_f = 12{,}6$ keV). Dit verschil blijft dus constant indien men stralingen met verschillende E_i meet.

In sommige gevallen kan men van de restpiek een nuttig gebruik maken, aangezien het energetisch scheidend vermogen van de teller in dit gedeelte van de impulshoogteverdelingskromme beter is dan in de hoofdpiek. Dit is als volgt in te zien. We beschouwen het geval dat men in de spectrochemische analyse twee dicht bij elkaar gelegen emissielijnen met quantumenergieën E_{i_1} en E_{i_2} wil scheiden, en we nemen aan dat de teller voor elke lijn een restpiek levert, waarbij de energie van het ontsnappende fluorescerende quantum E_f bedraagt. De gemiddelde impulsamplitude A_e van de restpiek is voor elke lijn eenzelfde bedrag ΔA ($\sim E_f$) kleiner dan de gemiddelde amplitude A_m van de hoofdpiek. De onderlinge afstand van de restpieken van beide stralingen is dus dezelfde als de onderlinge afstand van de hoofdpieken, $A_{e_1} - A_{e_2} = A_{m_1} - A_{m_2}$. De breedte W op halve piekhoogte van iedere piek in de impulshoogteverdeling echter is evenredig met de wortel uit de gemiddelde amplitude, $\sqrt{A}$ (zie boven). Elke restpiek is derhalve een factor $\sqrt{A_e/A_m}$ smaller dan de hoofdpiek. Klaarblijkelijk zal men de restpieken, die smaller zijn maar dezelfde onderlinge afstand hebben als de hoofdpieken, gemakkelijker dan deze kunnen scheiden. Hiervan kan men gebruik maken door het venster van de impulshoogteanalysator op een van de beide restpieken in te stellen in plaats van op een van de beide hoofdpieken.

Een frappant voorbeeld hiervan ziet men in *fig. 11*, waarin de impulshoogteverdelingskrommen van een met xenon gevulde proportionele teller zijn weergegeven voor de Kα-stralingen van praseodymium (atoomnummer 59, $E_i = 36{,}1$ keV) en van neodymium (atoomnummer 60, $E_i = 37{,}4$ keV).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

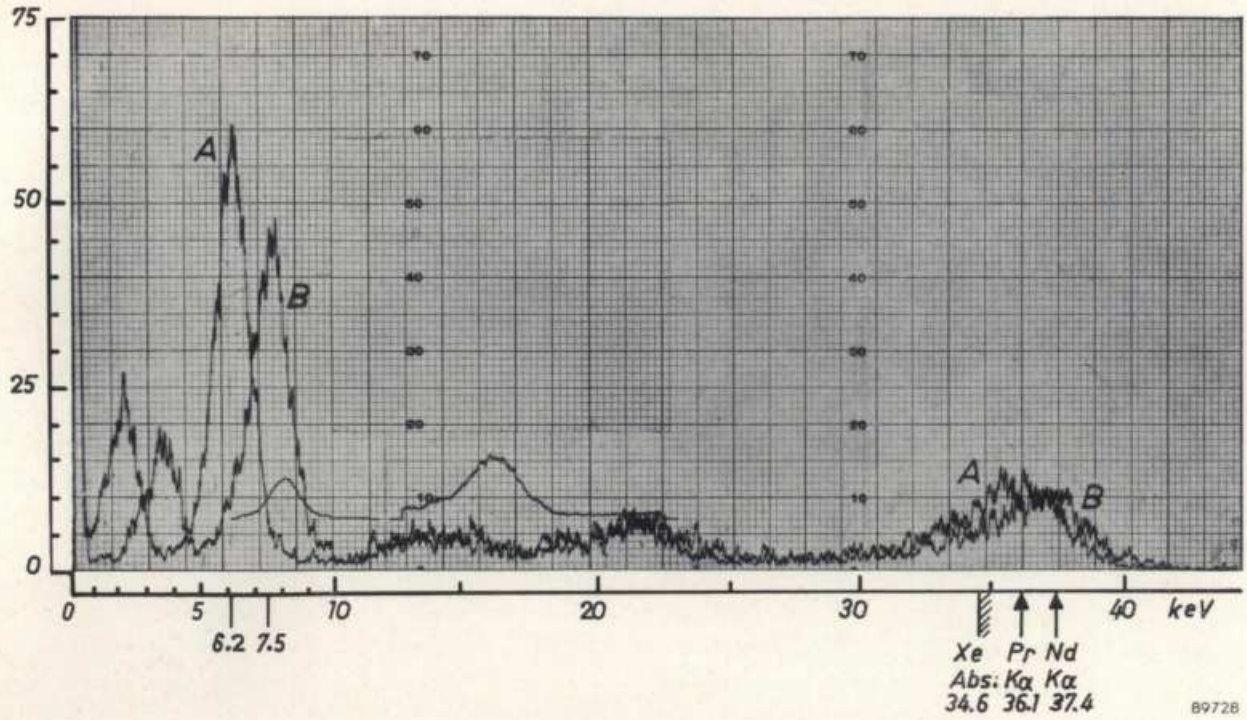

Fig. 11. Ter illustratie van het feit dat het scheidend vermogen van een teller in het gebied van de restpiek beter is dan in het gebied van de hoofdpiek. De impulshoogteverdelingskrommen A en B werden verkregen voor een proportionele teller met xenonvulling bij monochromatische stralingen met energieën 36,1 keV (praseodymium Kα) en 37,4 keV (neodymium Kα).

Beide stralingen hebben golflengten kleiner dan die van de K-absorptiekant van xenon en leveren een zeer grote restpiek (85% van het totale aantal der geproduceerde impulsen vallen in deze piek!). Aangezien de XeKα-quanta een energie E_f = 28,9 keV hebben, berekent men dat de breedte van de restpiek ongeveer 0,4 maal die van de hoofdpiek bedraagt. Er zij echter op gewezen dat het quantumtelrendement van de proportionele teller bij deze korte golven nogal laag is.

Op de afgebeelde registreerstrook is ook te zien dat een straling verscheidene restpieken kan leveren. Behalve Kα-quanta kunnen immers Kβ-quanta en in andere gevallen L-quanta met hun bijbehorende fijnstructuur als fluorescentiestraling worden uitgezonden. Gewoonlijk kunnen deze details worden verwaarloosd.

Vergelijking van de drie soorten detectoren voor praktische toepassingen

Bij het werken met de „Norelco" apparatuur zal men voor elk onderzoek de meest geschikte detector uit de drie beschikbare soorten moeten kiezen. Wij willen nu de overwegingen bespreken die deze keuze bepalen. Het is aangewezen, hierbij te beginnen met de spectrochemische analyse: de tekortkomingen van de geigerteller voor deze toepassing waren de aanleiding om de proportionele teller en scintillatieteller voor dit soort röntgenwerk in te voeren. Voor deze toepassing is derhalve de keuze nogal eenvoudig.

Spectrochemische analyse

Bij de spectrochemische analyse moet men stralingen van verschillende golflengten en met zeer uiteenlopende intensiteiten kwantitatief of semikwantitatief vergelijken. De niet-lineariteit van de geigerteller is voor dit geval een ernstig nadeel, aangezien hierdoor in het algemeen een correctie van de gemeten topintensiteiten nodig zal zijn. Een dergelijke correctie is niet gemakkelijk en ook niet nauwkeurig, vooral omdat de effectieve dode tijd van de teller, indien de röntgenbuis niet met een constante potentiaal doch b.v. met een dubbelfazig gelijkgerichte spanning wordt gevoed, van de golflengte afhangt [16]). Bij intensiteiten groter dan enige duizend impulsen per seconde (er kunnen intensiteiten van meer dan 10^5 impulsen per seconde voorkomen) zijn geen correcties meer mogelijk; het is dan noodzakelijk de intensiteiten door een gedoseerde absorptie terug te brengen tot het voor de geigerteller bereikbare gebied. Heeft men met een reeks verschillende golflengten te maken, dan is dit zeer lastig.

[16]) Bij een gegeven topspanning op de röntgenbuis neemt het gedeelte van de wisselspanningsperiode gedurende hetwelk de elementen in het preparaat kunnen fluoresceren, en waarin derhalve de te tellen quanta zijn samengepakt, met toenemend atoomnummer af. Voor lijnen met kleinere golflengten wordt dus de effectieve dode tijd langer.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Zowel de proportionele als de scintillatieteller is veel beter lineair dan de geigerteller. Hun dode tijd (circa 0,2 μsec) zou eerst bij telfrequenties van 10^7 impulsen per seconde of nog meer aanleiding geven tot niet-lineariteit. De praktische lineariteitsgrenzen worden in dit geval gesteld door de bijbehorende elektronische schakelingen. De normale „Norelco" deelschakeling veroorzaakt een telverlies van 10% bij 14 000 quanta per seconde. Nieuwe, thans beschikbare schakelingen zijn tot op 1% lineair bij 10 000 quanta per seconde. Voorts belette de tot dusver in onze onderzoekingen gebruikte impulshoogteanalysator de meting van telfrequenties hoger dan ongeveer 5000 quanta per seconde, ten gevolge van een verschuiving van het basispeil met de telfrequentie. Thans zijn betere analysatoren beschikbaar, die even eenvoudig zijn als de vroegere toestellen maar die intensiteitsmetingen mogelijk maken tot ongeveer 15 000 quanta per seconde of zelfs nog hoger, naar gelang van de telfrequentie van die impulsen die de analysator niet moet doorlaten.

Het sterk van de golflengte afhankelijke quantumtelrendement, dat de proportionele teller gemeen heeft met de geigerteller (fig. 7), maakt een correctie van de gemeten intensiteiten nodig indien van elementen die verscheidene atoomnummers uit elkaar liggen, de karakteristieke lijnen worden vergeleken zonder dat men vergelijkingsstandaarden gebruikt; dit is vaak het geval bij kwalitatieve en semikwantitatieve analyse. Hoewel er ook nog enige andere factoren zijn die de relatieve lijnintensiteiten beïnvloeden, is het voor de spectrochemische analyse toch een belangrijk voordeel van de scintillatieteller dat hierbij dank zij zijn zeer gelijkmatige spectrale gevoeligheidsverdeling correcties voor verschillen in telrendement niet nodig zijn. Nog belangrijker is, dat het quantumtelrendement van deze teller zo groot is, vooral bij golflengten kleiner dan 1 Å. Dit voordeel vindt men direct weerspiegeld in de tijd die nodig is voor elke meting, aangezien men voor een voorgeschreven nauwkeurigheid een bepaald aantal quanta moet vergaren (vgl. [2])); vergeleken met de proportionele teller met xenonvulling, is de telfrequentie die men met de scintillatieteller verkrijgt, bij het meten van CrKα bijna twee maal, bij AgKα ongeveer 12 maal zo groot.

Bij lange golven is het met het voordeel van de scintillatieteller spoedig gedaan, door de reeds vermelde relatief sterke ruis van de fotomultiplicator. In dit golflengtegebied hebben de metingen met alle soorten tellers te kampen met de moeilijkheid om voldoend doorzichtige röntgenstralenvensters te maken. Door een speciale constructie met doorstromend gas en niet-vacuümdichte vensters heeft men het nuttige meetgebied van de proportionele teller, die een zeer laag ruisniveau bezit, kunnen uitbreiden tot circa 12 Å (in een goniometer met helium [3])). Aldus konden met een behoorlijke verhouding van top tot achtergrond de Kα-lijnen van silicium (7,13 Å), aluminium (8,34 Å), magnesium (9,89 Å) en natrium (11,91 Å) worden gemeten [17]), terwijl de straling met de grootste golflengte waarbij wij nog bruikbare metingen met de scintillatieteller konden verrichten — hierbij kwamen een speciaal uitgezocht kristal en dito fotomultiplicatorbuis te pas —, de Kα-lijn van zwavel was (5,37 Å). Voor routinemetingen met de normale „Norelco" scintillatieteller is de golflengte van TiKα (2,8 Å) wel ongeveer de uiterste grens.

De mogelijkheid van impulshoogtediscriminatie met de scintillatieteller en de proportionele teller is voor de spectrochemische analyse een groot voordeel wanneer de topintensiteiten klein zijn. De analyse van elementen die in zeer geringe percentages of slechts in sporen aanwezig zijn, kan op deze wijze met betere nauwkeurigheid en grotere gevoeligheid worden uitgevoerd. In het reeds aangehaalde artikel [3]) is besproken hoe men impulshoogtediscriminatie kan toepassen om over elkaar vallende spectrale lijnen van verschillende elementen te scheiden en eventueel om een spectrochemische analyse geheel zonder dispersie uit te voeren. Het betere energetisch scheidend vermogen van de proportionele teller kan in deze gevallen van belang zijn, doch dit voordeel moet worden afgewogen tegen het hogere quantumtelrendement van de scintillatieteller voor korte golven.

Poederdiffractometrie

Bij de diffractometrie is de situatie in twee opzichten volkomen anders dan bij de spectrochemische analyse: de te meten intensiteiten zijn gewoonlijk veel kleiner, en men gebruikt in principe een monochromatische straling, b.v. CuKα (1,54 Å) of MoKα (0,71 Å) of CrKα (2,29 Å). De Bragg-reflecties van deze straling die men van het preparaat verkrijgt (scherpe lijnen), zijn gesuperponeerd op een achtergrond, die gewoonlijk uit twee bijdragen bestaat: straling met een continu spectrum, die door een röntgenbuis mede wordt uitgezonden en die door het preparaat wordt verstrooid, en karakteristieke röntgenfluorescentiestraling die in het

[17]) C. F. Hendee, S. Fine en W. Brown, Rev. sci. Instr. **27**, 531-535, 1956 (no. 7). Volgens een persoonlijke mededeling van Prof. C. H. Shaw van de Ohio State University heeft deze ongeveer dezelfde grens bereikt door proportionele tellers met een berylliumfoelie als venster te gebruiken.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

preparaat wordt opgewekt [18]). De verstrooide continue achtergrond heeft zijn grootste intensiteit bij golflengten die meestal veel kleiner zijn dan die van de nuttige straling. Een fluorescentie-achtergrond — die alleen zal optreden indien het preparaat elementen met voldoend lage aanslagspanning bevat — heeft kleinere of grotere golflengten dan de nuttige straling. De totale intensiteit en de spectrale verdeling van de achtergrond kunnen dus sterk verschillen naar gelang van het preparaat, de spanning op de röntgenbuis en andere experimentele omstandigheden.

Telbuizen voor poederdiffractometrie moeten een hoog quantumtelrendement hebben met het oog op de geringe intensiteit van de meeste diffractielijnen, en zij moeten een grote verhouding van top tot achtergrond leveren terwille van de meting van zwakke lijnen. Aan de lineariteit worden gewoonlijk geen grote eisen gesteld, en een vlak verloop van de spectrale gevoeligheidskromme is niet van belang. Het niet-vlakke verloop van deze kromme voor de geigerteller (en de proportionele teller) kan voor sommige toepassingen van de poederdiffractometrie zelfs als een voordeel worden beschouwd, aangezien dit een ruwe monochromatisatie bewerkstelligt, waardoor het kortgolvige gedeelte van de continue verstrooide achtergrond grotendeels wordt geëlimineerd. De kwalitatieve conclusie is dus dat voor vele toepassingen van de diffractometrie, speciaal wanneer de eenvoud van de apparatuur meetelt, de geigerteller een zeer geschikt instrument is. Niettemin kan de scintillatieteller, bij gebruik van een uitgebreider apparatuur, een nog betere verhouding van top tot achtergrond leveren: het ontbreken van het genoemde monochromatisatie-effect wordt goedgemaakt door impulshoogtediscriminatie. Het hoge quantumtelrendement van de scintillatieteller is eveneens een voordeel. Dit rendement zal anderzijds weer worden verminderd als men impulshoogtediscriminatie toepast: het venster van de impulshoogteanalysator, dat men instelt op de piek van de impulshoogteverdelingskromme voor de toegepaste monochromatische straling (fig. 8), zal ten gevolge van de eindige breedte van deze piek slechts een zeker percentage van de desbetreffende impulsen doorlaten. Het quantumtelrendement, vermenigvuldigd met deze „transmissiefactor", zullen we het „detectierendement" noemen. Maakt men het venster breder, dan vergroot men de transmissiefactor en dus het detectierendement, maar men vermindert het monochromatiserende effect.

Het is na het bovenstaande wel duidelijk dat voor de keuze van de beste detector voor elke toepassing van de poederdiffractiemetrie behoefte bestaat aan een kwantitatieve vergelijking van het detectierendement en van de verhouding van top tot intensiteit, die men met elk van de drie soorten detectoren kan krijgen. Kent men aan beide grootheden hetzelfde gewicht toe, dan kan men hun produkt als een eenvoudig „kwaliteits-

[18]) Ondersteld wordt dat geen verstrooide straling optreedt die niet aan het preparaat doch b.v. aan een slechte justering van de goniometer te wijten is. De verstrooiing in de lucht kan gewoonlijk worden verwaarloosd. Behalve de continue straling wordt ook een gedeelte van de nuttige monochromatische straling door het preparaat verstrooid (niet „gereflecteerd"). Deze bijdrage tot de achtergrond kan men natuurlijk niet door impulshoogtediscriminatie van de eigenlijke diffractielijn onderscheiden.

Een eventuele niet door röntgenstralen veroorzaakte achtergrond, zoals optreedt bij de diffractometrie van radioactieve preparaten [12]), behoeft hier niet te worden beschouwd.

Tabel I. Vergelijking van detectoren voor poederdiffractometrie. De metingen slaan op de (111)-reflectie van een preparaat van zuiver siliciumpoeder (geen fluorescentie-achtergrond). Voor ieder van de drie röntgenbuizen (met respectievelijk Mo, Cu en Cr als trefplaat) werd de spanning empirisch zo gekozen dat men de grootste verhouding tussen de nuttige karakteristieke en de ongewenste continue straling kreeg. Het venster van de impulshoogteanalysator werd zo ingesteld dat een transmissiefactor van ongeveer 0,90 verkregen werd. De metingen met de geigerteller zijn gecorrigeerd voor telverliezen door de dode tijd ($\tau = 270$ μsec). De kwaliteitscijfers stellen relatieve waarden voor, waarbij het eerste in elke groep gelijk aan 100 werd gesteld.

Detector	MoKα, 55 kV$_p$, 7 mA; filter Zr 0,05 mm; lijn P bij $2\Theta = 13{,}0°$ (achtergr. B bij 10,0°); bundelopening $2\alpha = 0{,}5°$			CuKα, 40 kV$_p$, 9,6 mA; filter Ni 0,018 mm; lijn P bij $2\Theta = 28{,}4°$ (achtergr. B bij 20,0°); bundelopening $2\alpha = 1{,}0°$			CrKα, 30 kV$_p$, 12,8 mA; filter V_2O_5; lijn P bij $2\alpha = 42{,}9°$ (achtergr. B bij 35,0°); bundelopening $2\alpha = 2{,}0°$.		
	Detectie-rend. %	P/B	Kwaliteits-cijfer	Detectie-rend. %	P/B	Kwaliteits-cijfer	Detectie-rend. %	P/B	Kwaliteits-cijfer
Scint. teller met imp.h.discr.	90	44	100	89	134	100	90	93	100
Scint. teller zonder imp.h.discr.	100	10	25	100	12	10	100	5	6
Prop. teller (Xe) met imp.h.discr.	12	44	13	56	146	69	58	92	64
Prop. teller (Xe) zonder imp.h.discr.	13	16	5	63	57	30	60	16	11
Prop. teller (Kr) met imp.h.discr.	12	51	15	33	64	18	—	—	—
Prop. teller (Kr) zonder imp.h.discr.	29	29	21	36	26	8	—	—	—
Geigerteller	14	27	10	51	46	20	59	18	13

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

cijfer" van de detector beschouwen. We hebben voor een grote verscheidenheid van gevallen metingen gedaan om de kwaliteitscijfers vast te stellen [6]).

In de eerste plaats kozen wij een typisch anorganisch preparaat, om hieraan metingen te verrichten met de drie eerdergenoemde stralingen. Het preparaat geeft bij geen van deze stralingen een meetbare fluorescentie. De uitkomsten zijn in *tabel I* bijeengebracht. Voor MoKα is de superioriteit van de scintillatieteller boven de andere detectoren zeer duidelijk; hij dankt deze superioriteit kennelijk aan zijn veel hoger quantumtelrendement bij deze golflengte. Men ziet dat het kwaliteitscijfer van de MoKα. Past men geen impulshoogtediscriminatie toe, dan ziet men duidelijk de voorsprong die de geigerteller (en de proportionele teller met xenon) krijgt door zijn geringere gevoeligheid voor de kortgolvige verstrooide straling; de proportionele teller met krypton heeft in dit geval een zeer laag kwaliteitscijfer, ten gevolge van de toeneming van zijn quantumtelrendement bij de KrK-absorptiekant (fig. 5), en evenzo valt het kwaliteitscijfer van de scintillatieteller zonder impulshoogtediscriminatie laag uit voor CuKα en CrKα. Voor het geval van CuKα wordt het effect van de impulshoogtediscriminatie duidelijk geïllustreerd door *fig. 12*.

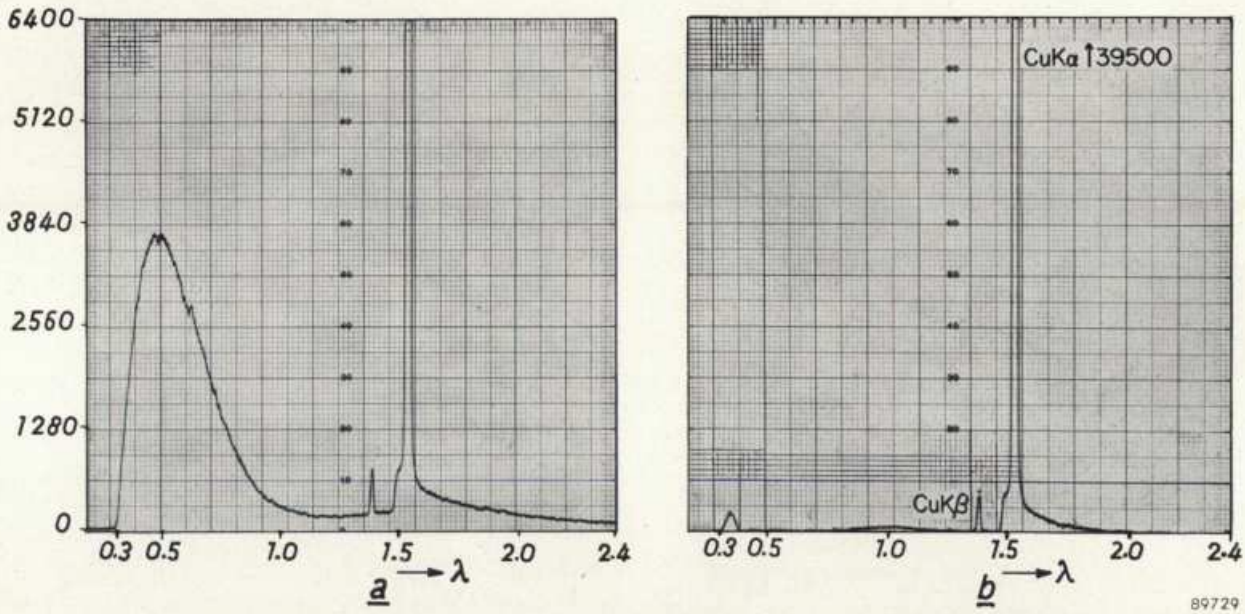

Fig. 12. Spectrum van een röntgenbuis met koperen trefplaat (40 kV_p, dubbelfazig gelijkgerichte spanning), opgenomen met een scintillatieteller en een analyserend kristal van silicium (111-vlak), *a*) zonder, *b*) met impulshoogtediscriminatie; het venster werd ingesteld op CuKα met een transmissiefactor 0,90. In beide gevallen werd een nikkelfilter ter dikte van 0,018 mm gebruikt dat de CuKβ-lijn nagenoeg elimineert en ook het continuüm verzwakt. Aan de vrijwel volledige onderdrukking van het continue spectrum in geval (*b*) is de enorme verbetering in de verhouding van top tot achtergrond te danken die men blijkens tabel I bij diffractometeropnamen van polykristallijne preparaten met CuKα-straling verkrijgt (toeneming van 12 tot 134). Terloops zij gewezen op de kleine piek bij ongeveer 0,35 Å, die aan het verschijnsel van de restpiek toe te schrijven is: door dit verschijnsel brengt straling met een golflengte van ongeveer 0,35 Å een zeker aantal impulsen te weeg die binnen het op 1,54 Å ingestelde analysatorvenster vallen.

proportionele teller met kryptonvulling daalt als men impulshoogtediscriminatie toepast. Dit merkwaardige feit wordt veroorzaakt door de sterke restpiek; onderdrukt men deze, dan verliest men meer in detectierendement dan men in de verhouding van top tot achtergrond wint. Ook voor CuKα- en CrKα-straling wint de scintillatieteller met impulshoogtediscriminatie het van de andere detectoren, maar niet met zulk een groot verschil als in het geval van

Er zij nog op gewezen dat de verhouding van top tot achtergrond die men, bij toepassing van impulshoogtediscriminatie, met de scintillatieteller en met de proportionele teller met xenon verkrijgt, voor CuKα en CrKα enige malen groter is dan voor MoKα. De oorzaak hiervan is dat de karakteristieke MoKα-lijn dicht bij het maximum van het continue spectrum ligt, terwijl de CuKα- en CrKα-lijnen ver van dit maximum verwijderd zijn [19]).

[19]) W. Parrish en T. R. Kohler, A comparison of X-ray wavelengths for powder diffractometry, J. appl. Phys., verschijnt binnenkort.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Een tweede reeks van metingen, die we hier niet in detail zullen beschrijven, betrof de bij verschillende diffractiehoeken gemeten continue achtergrond in de diffractiediagrammen van verschillende (niet-fluorescerende) preparaten. De totale achtergrond zonder impulshoogtediscriminatie varieerde bij de onderzochte preparaten met een factor 20. In het geval van de scintillatieteller varieerde de vermindering van de totale achtergrond die door toepassing van impulshoogtediscriminatie werd verkregen[6]), van een factor 2 (preparaat van hexamethyleentetramine) tot een factor 53 (preparaat van zilver). Bij de proportionele teller met xenonvulling gaf discriminatie een geringere verminderingsfactor, zoals op grond van diens lager quantumtelrendement in het gebied der korte golven te verwachten was.

Ten slotte werden er een aantal metingen verricht over de achtergrond ten gevolge van fluorescentie van het preparaat. We kozen hiervoor het vrij moeilijke geval van het diffractiediagram van ijzerpoeder opgenomen met CuKα-straling. Behalve een zekere hoeveelheid verstrooide kortgolvige continue straling, bevat de door het ijzerpreparaat geleverde achtergrond een sterke fluorescentiestraling van FeKα en FeKβ. De golflengte van FeKα (atoomnummer 26, $\lambda = 1{,}93$ Å, energie 6,4 keV) ligt tamelijk dicht bij die van CuKα (atoomnummer 29, $\lambda = 1{,}54$ Å, energie 8,0 keV). De mate waarin door impulshoogtediscriminatie de ongewenste FeK-straling kan worden onderdrukt als men het venster instelt op CuKα, zal in dit geval ten zeerste afhangen van het energetisch scheidend vermogen van de telbuis. Het effect van de discriminatie is in dit geval gemakkelijker kwantitatief te bepalen dan bij de onderdrukking van een continue achtergrond, aangezien men de quantumtelrendementen voor slechts twee golflengten behoeft te beschouwen. In de plaats van de vroeger gebruikte verhouding van top tot achtergrond treedt nu de verhouding van de detectierendementen voor de twee bedoelde golflengten (d.w.z. CuKα/FeKα), en het kwaliteitscijfer wordt voor dit geval gedefinieerd als het produkt van deze verhouding en het detectierendement voor CuKα.

Het detectierendement van een teller bij een gegeven instelling van het analysatorvenster kan gemakkelijk als functie van de golflengte worden berekend uit zijn spectrale gevoeligheidskromme (fig. 7) en de impulshoogteverdelingskromme voor monochromatische straling (b.v. fig. 8). In *fig. 13a* ziet men het resultaat voor de proportionele teller met xenonvulling, in fig. 13*b* voor de scintillatieteller. Voor beide gevallen werd gerekend met een symmetrische instelling van het venster, met een transmissiefactor 0,90.

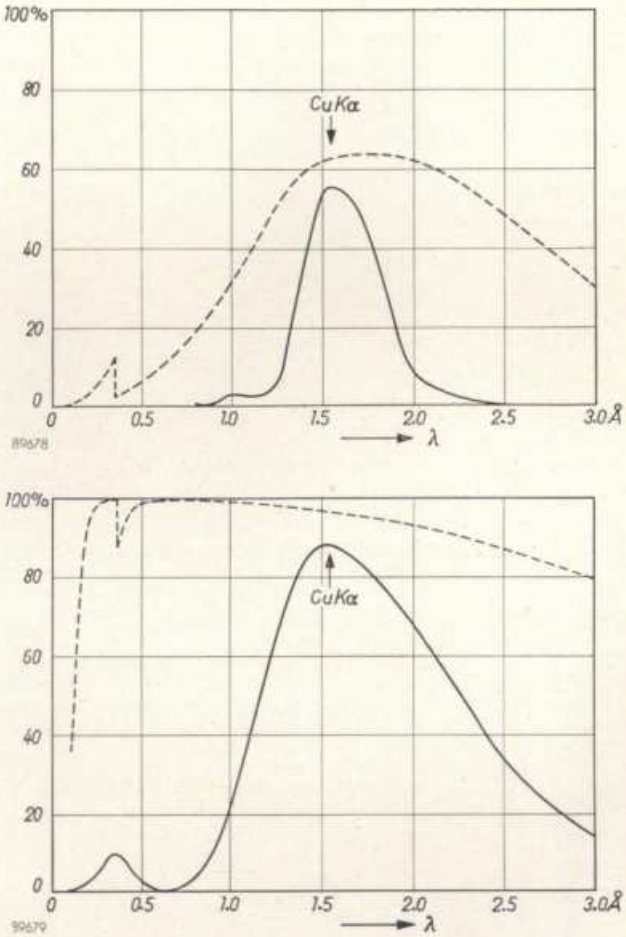

Fig. 13. Detectierendement voor monochromatische stralingen als functie van λ, verkregen met een symmetrisch venster van de impulshoogteanalysator, ingesteld op CuKα en met een transmissiefactor van 0,90. *a*) Proportionele teller gevuld met xenon, *b*) scintillatieteller. De waarden werden berekend uit de quantumtelrendementen (gestippelde krommen, als in fig. 7) en de impulshoogteverdelingskrommen.

Het resultaat valt enigszins tegen: de verkregen verhouding CuKα/FeKα is voor de scintillatieteller slechts 1,2, voor de proportionele teller 1,6. Het is echter niet beslist noodzakelijk om met een symmetrische instelling als bovenvermeld van het venster van de impulshoogteanalysator te werken. Neem de integraalkrommen van de proportionele teller voor CuKα- en voor FeKα-straling, *fig. 14*. De vermelde symmetrische instelling van het venster is door verticale lijnen aangegeven. Verschuift men de onderste grens van het venster naar hogere amplitudes, zodat men een asymmetrisch venster krijgt, dan wordt het detectierendement voor FeKα sterker verminderd dan dat voor CuKα. Met het in fig. 14 gearceerd aangegeven asymmetrische venster krijgt men een verhoudingsgetal 25. Een soortgelijke, hoewel minder verbluffende verbetering krijgt men bij gebruik van een asymmetrisch venster voor de

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

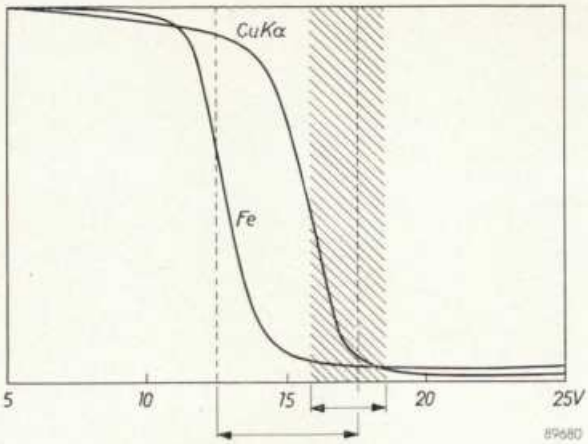

Fig. 14

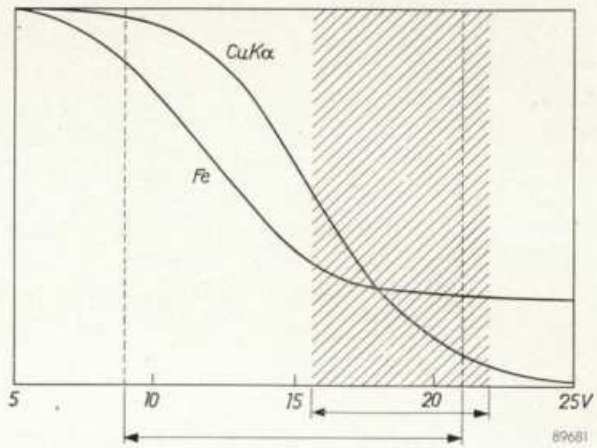

Fig. 15

Fig. 14. Integraalkrommen van de impulsen verkregen met de proportionele teller met xenonvulling in het geval van CuKα-straling (111-diffractielijn van een siliciumpoederpreparaat) en met de achtergrond van een preparaat van zuiver ijzer bij $2\Theta = 23°$; in dit geval overheerst de FeK-fluorescentie. De verticale lijnen geven de gebruikelijke symmetrische instelling van het venster van de impulshoogteanalysator aan (transmissiefactor 0,90). Experimentele voorwaarden: röntgenbuis met koperen trefplaat, nikkelfilter van 0,002 mm dikte voor de onderdrukking van CuKβ, bundelopening $2\alpha = 2°$, breedte van de ontvangspleet 0,6 mm. De spanning op de röntgenbuis was 20 kV_p voor het silicium- en 40 kV_p voor het ijzerpreparaat. De krommen zijn herleid tot eenzelfde telfrequentie bij een impulsamplitude van 5 V (dit is toelaatbaar, aangezien slechts de relatieve door de analysator veroorzaakte verzwakkingen worden beschouwd).

Fig. 15. Hetzelfde als in fig. 14, thans voor de scintillatieteller. De geringere helling van de krommen, vergeleken bij fig. 14, is toe te schrijven aan het slechtere energetisch scheidend vermogen van de scintillatieteller. Het hogere intensiteitsniveau bij impulsamplitudes boven ongeveer 18 V (verstrooid continuüm met korte golven) is te wijten aan het hogere quantumtelrendement van deze teller bij kleine golflengten.

scintillatieteller, zoals men in *fig. 15* ziet. De resultaten zijn in *tabel II* samengevat.

De geringere verbetering in het geval van de scintillatieteller is een gevolg van zijn geringer energetisch scheidend vermogen. Anderzijds kan zelfs het betere scheidend vermogen van de proportionele teller ontoereikend blijken indien men met nog kleinere golflengteverschillen te maken krijgt, zoals in het geval van CoK-fluorescentie (atoomnummer 27) die door CuKα-straling wordt aangeslagen. In dat geval zou men achter het preparaat een kristalmonochromator moeten plaatsen, om de gehele fluorescentie-achtergrond te verwijderen; de impulshoogteanalysator kan men weglaten, en men zal dan voor het meten van de gemonochromatiseerde straling het liefst eenvoudig een geigerteller gebruiken, vooral aangezien de intensiteiten in dit geval nogal laag zullen zijn. Dit voorbeeld vormt daarmee een goed besluit voor dit artikel: het voert het oudste lid van de familie der röntgentelbuizen weer ten tonele en het demonstreert duidelijk dat voor ieder lid van deze familie specifieke toepassingen bestaan waarin het de andere leden de baas is.

Tabel II. Vermindering van een fluorescentie-achtergrond door impulshoogtediscriminatie (ijzerpreparaat, straling van een röntgenbuis met koperen trefplaat en 40 kV_p voedingsspanning; voor de overige experimentele omstandigheden zie fig. 14).

	Symmetrisch analysatorvenster		Asymmetrisch analysatorvenster	
	Verhouding van detectierendementen CuKα/FeKα	Kwaliteitscijfer	Verhouding van detectierendementen CuKα/FeKα	Kwaliteitscijfer
Proportionele teller met xenon	1,6	13,5	25	100
Scintillatieteller	1,2	16,3	4,1	27,5

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Samenvatting. Voor de „Norelco" röntgengoniometer zijn beschikbaar een geigerteller, een proportionele teller gevuld hetzij met xenon hetzij met krypton, en een scintillatieteller. Deze drie detectoren kunnen gemakkelijk worden verwisseld. De constructie en het mechanisme van elk der detectoren worden in dit artikel in het kort beschreven. De belangrijkste eigenschappen van de drie detectoren zijn de volgende: de geigerteller levert grote impulsamplitudes, waardoor de apparatuur zeer eenvoudig wordt; bij de proportionele en de scintillatieteller zijn de metingen tot zeer hoge telfrequenties lineair en de impulsamplitudes zijn evenredig met de quantumenergie, waardoor impulshoogtediscriminatie mogelijk wordt. Verder heeft de scintillatieteller het grootste quantumtelrendement en een zeer vlakke spectrale gevoeligheidskromme, terwijl de proportionele tellers een beter energetisch scheidend vermogen bezitten. Na bespreking van enige aspecten van de impulshoogtediscriminatie (met name het energetisch scheidend vermogen en het verschijnsel van de „restpiek" (escape peak)) wordt uitvoerig ingegaan op de relatieve waarde van de verschillende soorten detectoren voor verschillende toepassingen. Voor spectrochemische analyse zal in de meeste gevallen de scintillatieteller de voorkeur verdienen, tot golflengten van ca. 3 Å. Bij langere golven verdient een proportionele teller met zeer dun venster (hetzij afgesmolten, hetzij met continu doorstromend gas) de voorkeur. Voor het geval van de poederdiffractometrie kan men aan de telbuizen een kwaliteitscijfer toekennen, dat het produkt is van het quantumtelrendement en de verhouding van de topintensiteit van een diffractielijn tot de achtergrond. Voor een normaal, niet-fluorescerend preparaat, dat met drie stralingen wordt onderzocht (CuKα, MoKα en CrKα), is het kwaliteitscijfer voor verschillende tellers berekend. Bij gebruik van MoKα-straling vindt men verreweg het hoogste kwaliteitscijfer voor de scintillatieteller; bij CuKα- en CrKα-straling is zijn superioriteit boven de met xenon gevulde proportionele teller minder frappant. Ten slotte wordt een fluorescerend preparaat beschouwd (ijzerpoeder geanalyseerd met CuKα). Impulshoogtediscriminatie sorteert in dit geval een bijzonder groot effect indien men met een asymmetrische instelling van het analysatorvenster werkt, en de met xenon gevulde proportionele teller is hier dank zij zijn beter energetisch scheidend vermogen duidelijk de meerdere van de scintillatieteller.

KLEINE VOORSCHAKELAPPARATEN VOOR „TL" LAMPEN

621.327.534.15.032.434

De ontwerper van armaturen voor „TL" lampen wenst het voorschakelapparaat in het algemeen zo klein en zo licht mogelijk, omdat hij dan voor zijn armaturen constructies kan toepassen die de kleinste hoeveelheid materiaal vergen en het sierlijkst van vorm zijn. Aangenomen dat de schakeling, het lamptype, de netspanning en de frequentie vastliggen, kan men echter, zonder speciale maatregelen te nemen, de afmetingen van een voorschakelapparaat niet ongestraft verkleinen. Immers, de verliezen in het apparaat en de temperatuur van het erin gebruikte isolatiemateriaal zullen door het verkleinen toenemen; de grotere verliezen verminderen het rendement van de installatie, de hogere temperatuur betekent, bij gegeven isolatiemateriaal, een kortere levensduur van het apparaat.

De mate waarin deze nadelige gevolgen optreden, kan als volgt worden geschat [1]). Gaat men uit van een goed geconstrueerd voorschakelapparaat en denkt men alle afmetingen hiervan verkleind tot $1/p$ maal de oorspronkelijke waarde ($p > 1$), dan dalen volume en gewicht tot $1/p^3$ van hun uitgangswaarde. Houdt men het vermogen in de lamp constant, dan worden de verliezen in het koper en het ijzer van het verkleinde apparaat, als gevolg van de grotere stroomdichtheid resp. van de grotere magnetische inductie, p maal zo groot. Dit grotere verlies wordt als warmte afgevoerd door een p^2 maal kleinere oppervlakte, zodat de temperatuurstijging van de isolatie p^3 maal zo groot zal worden. Wil men het volume b.v. 25% verkleinen ($p = \sqrt[3]{4/3} = 1{,}10$), dan moet men dus een toeneming van het totale verlies met 10% en een toeneming van de temperatuurstijging met 33% verwachten. De vrij geringe stijging van het verlies is soms nog wel te compenseren door zorgvuldiger constructie of door gebruik van een beter magnetisch materiaal; de temperatuurstijging echter kan alleen worden vermeden door zorg te dragen voor een aanzienlijk betere warmteafvoer.

Van de spoelen en kernen waarin de warmte wordt ontwikkeld, wordt deze overgebracht naar de wand van de doos waarin het voorschakelapparaat is ondergebracht, en vervolgens via de armatuur afgegeven aan de omgeving. De constructie van de armatuur en het warmtecontact tussen dooswand en armatuur zijn hier van groot belang [2]). Deze kwesties zullen in dit artikel echter onbesproken blijven, omdat de ontwerper van voorschakelapparaten er geen directe invloed op heeft. Waarnaar deze wèl kan streven, is een zo klein mogelijk verschil tussen de temperatuur van de warmste plek van de isolatie en de temperatuur van het buitenoppervlak. Om dit temperatuurverschil klein te houden, moet men alle ruimte tussen de kern en de spoel enerzijds en de dooswand anderzijds opvullen met een de warmte goed geleidend materiaal, dat bovendien nog een reeks andere eigenschappen moet

[1]) Zie b.v. C. Zwikker e.a., Fluorescentieverlichting, Philips' technische Bibliotheek, uitg. Meulenhoff, Amsterdam 1950, blz. 130.

[2]) Th. Hehenkamp, Warmteproblemen bij gebruik van fluorescentielampen, Electrotechniek **33**, 511-515, 1955 (no. 26).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

bezitten. In het algemeen moet men van het vulmateriaal verlangen dat het

a) de warmte goed geleidt,
b) elektrisch goed isoleert,
c) de akoestische trillingen dempt,
d) vochtwerend is,
e) ook in nauwe tussenruimten goed doordringt,
f) niet verweekt bij hogere temperaturen,
g) thermisch weinig uitzet, en
h) goedkoop is.

Wij zullen nu nagaan, in hoeverre enige gebruikelijke vulmaterialen aan deze eisen voldoen.

Een veelvuldig gebruikt materiaal is asfalt, in de vorm van een gietmassa. De warmtegeleidingscoëfficiënt van asfalt is ca. 10^{-3} W per cm en per °C. Door bijmenging van kwartszand, kwartsmeel (dat fijner van korrel is), aluminiumoxyde of een dergelijke stof kan de warmtegeleiding nog een factor 3 tot 6 worden verbeterd. Daar smoorspoelen en transformatoren van voorschakelapparaten worden belast met een af te voeren vermogen van ca. 0,1 W/cm², treedt in een omhulling van gemiddeld 3 mm dikte een temperatuurval van 10 tot 5 °C op.

Een onaangename eigenschap van asfalt is echter de verweking bij hogere temperaturen. Is de doos volledig gevuld, dan zal er als gevolg van thermische uitzetting asfalt door de naden van de doos naar buiten worden geperst. Bovendien kunnen onderdelen — als ze niet aan de doos zijn bevestigd, en dat doet men bij voorkeur niet, om storend gebrom te vermijden — in het weke asfalt wegzakken en kortsluiting veroorzaken. Men kan dit wel vermijden door de doos niet geheel te vullen en stroken isolatiepapier tussen de onderdelen en de dooswand te leggen (*fig. 1*), maar de warmteoverdracht wordt dan aanzienlijk minder gunstig.

Om deze reden en wegens het gevaar van uitlekken van de vulmassa wordt in de door Philips gefabriceerde voorschakelapparaten geen asfalt gebruikt.

Het zoeken naar een niet-verwekend vulmiddel heeft ca. vijf jaar geleden geleid tot het gebruik van gekreukt aluminiumfoelie. De warmtegeleidingscoëfficiënt van aluminium is ca. 300 maal zo groot als die van de beste asfaltvulmassa. Bij gebruik van een massieve aluminiumvulling zou de temperatuurval dus verwaarloosbaar klein worden. Dit is echter technisch niet uitvoerbaar; men is gedwongen, een zeer groot gedeelte van de winst weer op te offeren, omdat het aluminium in een verwerkbare vorm moet zijn en omdat de spoel door een goede elektrische isolatie omgeven moet zijn. Dit leidde tot de keus van aluminiumfoelie dat door een voorbehandeling is voorzien van een groot aantal oneffenheden en dat als pakketjes of lagen wordt aangebracht in de ruimten tussen de onderdelen en de doos (*fig. 2*). Op deze wijze ontstaat met een gering gewicht aan aluminium een warmtegeleiding langs een groot aantal contactpunten, waardoor de warmteafvoer even goed is als bij een volledige vulling met de beste asfaltgietmassa. Bovendien is het gekreukte foelie een effectief middel tegen het zg. sjirpen (het vrij hoge geluid, veroorzaakt door vrije mechanische trillingen van smoorspoel- of transformatorkern, zoals al eens in dit tijdschrift is uiteengezet [3]).

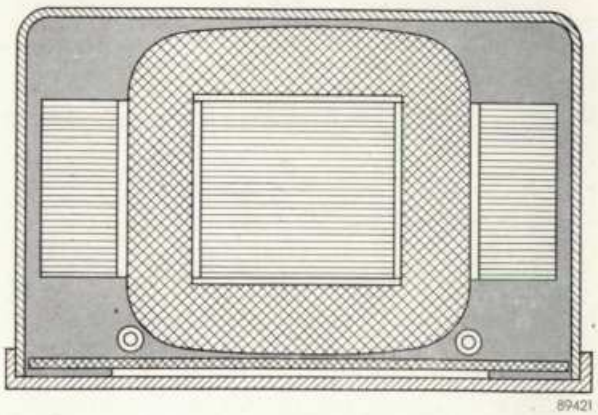

Fig. 1. Doorsnede van een voorschakelapparaat met asfaltgietmassa (in de door Philips gefabriceerde voorschakelapparaten niet gebruikt wegens de kans op uitlekken van de vulmassa).

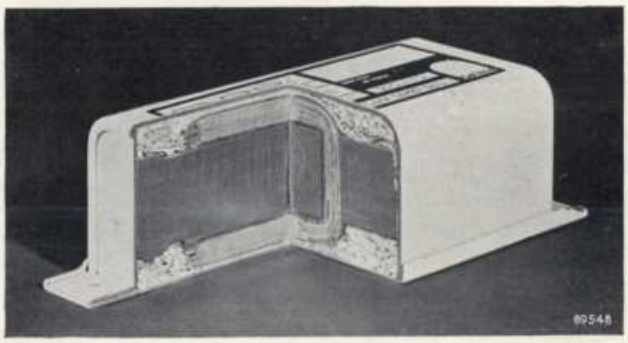

Fig. 2. Doorsnede van een voorschakelapparaat met vulling van gekreukt aluminiumfoelie.

Hoewel de hiermee verkregen resultaten zeer gunstig waren, is het onderzoek naar betere vulmaterialen voortgezet, en met name naar elektrisch niet-geleidende materialen, zodat men geen isolatiemateriaal om de spoelen behoeft aan te brengen. Onder de elektrisch niet-geleidende materialen trok al spoedig de aandacht de groep der polyester-

[3]) E. W. van Heuven, De geluidemissie van voorschakelapparaten voor fluorescentielampen, Philips techn. T. **18**, 83-92, 1956 (no. 3), in het bijzonder blz. 91-92.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

harsen [4]). Deze gietbare harsen isoleren uitstekend, zijn goed vochtwerend en hebben een redelijke warmtegeleidingscoëfficiënt (ca. 2×10^{-3} $Wcm^{-1}°C^{-1}$). De oorspronkelijk plastische giethars verhardt door een chemische reactie en blijft daarna hard, ook bij de hoogste temperaturen die bij voorschakelapparaten voorkomen. Hij krimpt echter bij het hard worden vrij sterk (ca. 7%) en de prijs is voor een vulmiddel hoog. Door bijmengen van geschikte stoffen zijn deze bezwaren sterk te verminderen: de krimp kan worden teruggebracht tot 1 à 2%, waarbij tegelijk de prijs belangrijk daalt en bovendien de warmtegeleiding wordt opgevoerd tot het 3- à 5-voudige. In de onverharde toestand kan het mengsel een zodanige viscositeit hebben dat het goed tot in nauwe spleten doordringt; zo nodig, kan men een kleine overdruk toepassen om het erin te persen. Enige holten blijven ook dan nog wel over, maar deze doen aan de warmteafvoer geen noemenswaardige afbreuk. Men kan dus praktisch van een volledige vulling spreken (*fig. 3*).

De winst die met een goede vulmassa op polyesterbasis is te verkrijgen, kan het best worden geïllustreerd door middel van enige voorbeelden.

Een van de belangrijkste voorschakelapparaten is het inductieve type voor de „TL" lamp van 40 W en voor een netspanning van 220 V. In de bestaande uitvoering, met aluminiumfoelie, heeft de doos van dit apparaat een lengte van 122 mm. In de nieuwe uitvoering is deze lengte, bij onveranderde dwarsdoorsnede, verkleind tot 77 mm, een vermindering van 37%. De smoorspoel zelf is in lengte verkleind van 106 tot 65 mm, en in dwarsafmetingen iets vergroot, wat mogelijk werd dank zij het goede doordringingsvermogen van de vulmassa. *Tabel I* geeft een overzicht van enige gegevens van beide apparaten, die in *fig. 4* zijn afgebeeld.

Tabel I. Enige gegevens van het voorschakelapparaat voor de „TL" lamp 40 W, netspanning 220 V, in oude en nieuwe uitvoering (met aluminiumfoelie resp. polyestervulmassa).

	Aluminium-foelie	Polyester-vulmassa
Totale lengte (mm)	150	105
lengte doos (mm)	122	77
gewicht (kg)	1,35	0,95
verliezen (W)	9	9
temperatuurstijging (°C) *)	55	55

*) Gemeten bij 10% overspanning in de meetopstelling volgens de International Commission on Rules for the Approval of Electrical Equipment.

[4]) Miniaturizing with plastics, Brit. Plastics **24**, 302-307, 1951. J. P. Mudde, Poly-ester gietharsen, Plastica **6**, 12-15, 1953.

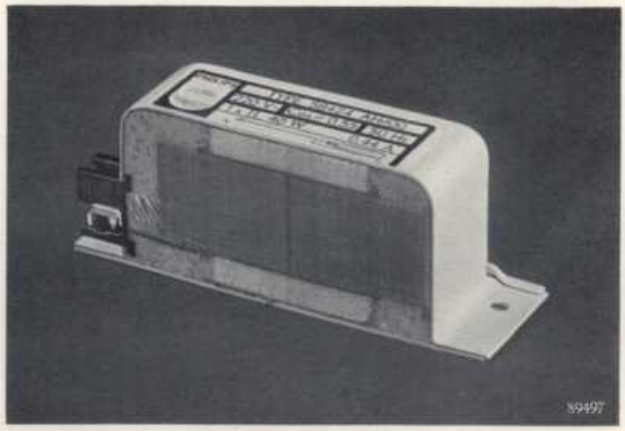

Fig. 3. Doorsnede van een voorschakelapparaat met vulling op basis van polyesterhars.

De aanzienlijke reductie in lengte heeft als bijkomstig voordeel dat het geleverde geluidsvermogen belangrijk minder wordt (zie het in [3]) aangehaalde artikel). Ten eerste worden namelijk de elastische bewegingen van de smoorspoel- of transformatorkern kleiner, dank zij de grotere stijfheid van het kortere ijzercircuit. Ten tweede nemen ook de magnetostrictieve bewegingen af, daar deze, bij dezelfde magnetische inductie, evenredig zijn met de lengteafmetingen. In de derde plaats wordt het magnetische spreidingsveld zwakker en daarmee de krachten die op de omhullende doos van staalplaat werken. Dit alles heeft tot gevolg dat bepaalde constructies die met de aluminiumfoelietechniek niet te maken waren, omdat bij de dan noodzakelijke lengten het gebrom te sterk zou zijn, met een polyestervulling wèl uitvoerbaar zijn.

Een voorbeeld hiervan is het inductieve voorschakelapparaat, wederom voor de „TL" lamp van 40 W, maar nu voor een netspanning van 110 V. De lamp heeft voor het ontsteken en het stabiel branden een voedingsspanning van nominaal ten minste

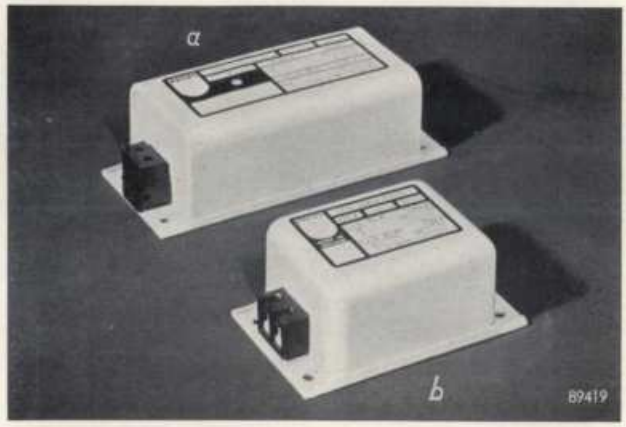

Fig. 4. Voorschakelsmoorspoelen voor „TL" lamp 40 W, netspanning 220 V. *a* is gevuld met aluminiumfoelie, *b* met polyesterhars.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

200 V nodig. Men kan deze verkrijgen door middel van een (auto)transformator. Construeert men deze op de gewone wijze (d.w.z. met geringe spreiding), dan moet men in serie met de lamp een afzonderlijke smoorspoel opnemen, zoals ook nodig is bij voeding uit een net van 220 V. Men komt alsdus tot een transformator van ca. 100 VA en een smoorspoel van ca. 75 VA, die beide, uitgevoerd volgens de aluminiumtechniek, een laag bromniveau hebben.

Aantrekkelijker (want kleiner en goedkoper) is een spaarlektransformator, d.i. een autotransformator met opzettelijk aangebrachte spreiding tussen de beide delen van de spoel. Een afzonderlijke smoorspoel is niet nodig indien men de spreiding de juiste waarde geeft. *Fig. 5* toont een praktische constructie [5]). Zulk een spaarlektransformator echter zou, bij gebruik van de aluminiumfoelietechniek en met de normale dwarsdoorsnede, ca. 170 mm lang worden. Bij deze lengte kan het bromniveau niet tot een acceptabele waarde worden gedrukt. Daarom waren wij tot dusverre gedwongen, de duurdere oplossing met afzonderlijke transformator en smoorspoel te kiezen. Dank zij de polyestervulmassa kon de lengte zodanig verkleind worden dat het bromniveau laag genoeg kwam te liggen. Deze vulmassa heeft in dit geval dus een dubbel voordeel opgeleverd. Van beide uitvoeringen, afgebeeld in *fig. 6*, vindt men enige gegevens in *tabel II*.

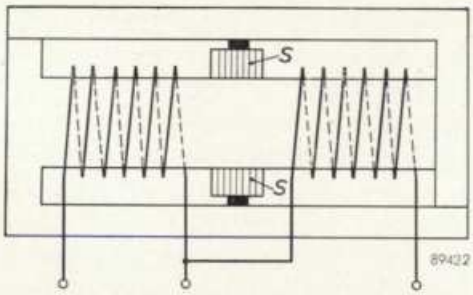

Fig. 5. Spaarlektransformator [5]). De gelamelleerde magnetische shunts S worden zo diep tussen de beide delen van de spoel gedreven dat de spreiding de juiste waarde aanneemt; daarna worden de shunts vastgespied.

[5]) H. A. W. Klinkhamer, Philips techn. T. **1**, 346, 1936, fig. 7.

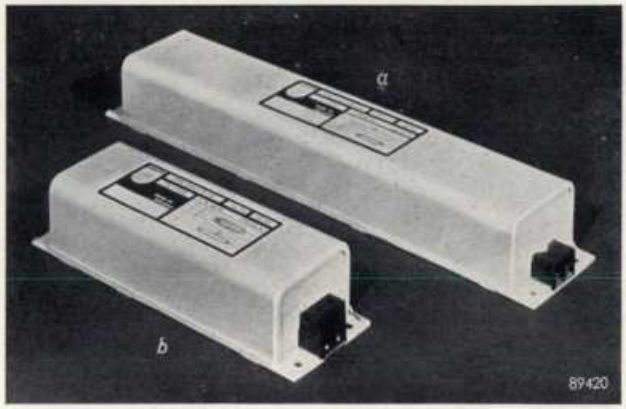

Fig. 6. Voorschakelapparaten voor „TL" lamp 40 W, netspanning 110 V. *a*) Afzonderlijke transformator en smoorspoel, vulling aluminiumfoelie. *b*) Spaarlektransformator, vulling op basis van polyesterhars.

Tabel II. Enige gegevens van het voorschakelapparaat voor een „TL" lamp 40 W, netspanning 110 V, in oude en nieuwe uitvoering.

	Afzonderlijke transf. en smoorspoel; alum. foelie	Spaarlek-transformator; polyester-vulmasa
Totale lengte (mm)	330	195
lengte doos (mm)	302	167
gewicht (kg)	3,1	1,85
verliezen (W)	18	14
temperatuurstijging (°C) *)	65	55

*) Gemeten bij 10% overspanning in de meetopstelling volgens de International Commission on Rules for the Approval of Electrical Equipment.

Th. HEHENKAMP.

OVERZICHT VAN RECENTE WETENSCHAPPELIJKE PUBLIKATIES DER N.V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN

Van deze publikaties, voor zover niet met een sterretje * gemerkt, verstrekt de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven, op aanvrage overdrukken.

2330: A. M. Kruithof: Quelques idées sur les transformations du verre (Verres et Réfractaires **9**, 311-319, 1955, no. 6).

Metingen bij verschillende glassoorten tonen aan dat voor iedere glassoort de soortelijke massa bij kamertemperatuur afhangt van de thermische voorgeschiedenis. Dit kan worden verklaard door aan te nemen dat bij hogere temperatuur behorende structuren worden „ingevroren", waarbij men voor een kwantitatieve beschouwing kan uitgaan van de krimpkrommen. Volgens Tool kan men de ingevroren toestanden karakteriseren met een „fictieve temperatuur". Met de theorie van de ingevroren toestanden kan men zowel onderlinge verschillen tussen uitzettingskrommen van verschillende glasmonsters van dezelfde glassoort verklaren, als het verschil tussen uitzettings- en krimpkromme voor hetzelfde glasmonster. De begrippen „transformatie-

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

punt" en „transformatiegebied" worden vanuit het standpunt der genoemde theorie opnieuw bekeken. Het gedrag van andere fysische eigenschappen, zoals de viscositeit en het elektrische geleidingsvermogen voor gelijkstroom, ondersteunt de theorie. Zet men de logaritme van de soortelijke weerstand uit als functie van $1/T$ (T is de temperatuur in °K), dan vindt men een kromme die bestaat uit drie rechte lijnen. De twee knikpunten in deze kromme corresponderen mogelijk met structuurtransformaties in het glas. Om dit te toetsen, is een thermische differentiaalanalyse uitgevoerd. Wat betreft de bij de laagste temperatuur behorende knik werd echter geen zekerheid verkregen.

2331: H. G. van Bueren: Theory of the formation of lattice defects during plastic strain (Acta metall. **3**, 519-524, 1955, no. 6).

Het verband tussen de concentraties van dislocaties, vacatures en interstitiële atomen en de plastische rek van een metaal wordt theoretisch onderzocht. Aangenomen wordt dat dislocaties gevormd worden door bronnen, en dat de andere roosterfouten ontstaan als gevolg van de beweging van „knikken" in de dislocaties. Het gedrag van een dislocatiebron onder een variërende spanning wordt onderzocht, zowel voor het geval van statische als van dynamische werking. Beide generatiemethodes leveren na een rek van enkele procenten dezelfde aantallen dislocaties. Het is mogelijk de theorie zodanig op te bouwen dat kennis van de verstevigende eigenschappen van het materiaal niet nodig is. De concentraties van de roosterfouten kunnen dan uitgedrukt worden als functies van de rek (althans voor rekken tussen ca. 5 en 100%). De resultaten worden vergeleken met de uitkomsten van experimenten die de kritische schuifspanning, de zg. elementaire glijlijnenstructuur en het verband tussen rek en elektrische weerstand bij licht gedeformeerd koper betreffen.

2332: G. Brouwer: Electrical analog of the eddy-current-limited domain-boundary motion in ferromagnetics (J. appl. Phys. **26**, 1297-1301, 1955, no. 11).

Voor de verliezen in een ferromagnetische kern vindt men experimenteel altijd grotere waarden dan men berekent op grond van de onderstelling van een homogene permeabiliteit. Berust het magnetisatieproces op wandverschuivingen, dan is de permeabiliteit zeker niet homogeen, doch bereikt ze extreme waarden in de wanden der gebieden van Weiss. De door wervelstromen veroorzaakte verliezen worden hierdoor vergroot. Dit is de bekende wervelstroom-anomalie. Het effect neemt toe met toenemende grootte van de gebieden van Weiss. Met behulp van een elektrisch analogon is de verdeling der wervelstromen en de beweging der wanden voor een aantal geïdealiseerde gevallen onderzocht.

2333*: A. van Weel: Un nouveau système de mesure des angles de phase (Aéro-électronique, 1er Congrès International, Dunod, Parijs 1955, blz. 565-572).

Schakelt men een vierpool in de terugkoppellus van een oscillator, dan wordt de frequentie van de laatste beïnvloed door de fazeverandering die een golf bij doorgang door de vierpool ondergaat (zie ook Philips techn. T. **15**, 335-344, 1953). Dit principe, waarbij fazeverschillen in frequentieverschillen worden getransformeerd, leent zich zeer goed voor het meten van fazehoeken. Men kan aldus fazemeters construeren met de volgende eigenschappen: meetgebied 0-360° of meer, met een nauwkeurigheid van 1°; kleine fazevariaties meetbaar met een nauwkeurigheid beter dan 0,01°; directe aanwijzing op een geijkte lineaire schaal. In bepaalde gevallen heeft men te maken met een onbekende fazehoek die veroorzaakt wordt door een vierpool die men niet in de oscillatorlus kan schakelen. Om in zulk een geval de fazebetrekking tussen twee wisselspanningen in het algemeen te kunnen meten, is een nieuwe methode bedacht, waardoor de onbekende fazehoek in een oscillator met een speciale schakeling kan worden geïntroduceerd. Aan de reeds vermelde eigenschappen kan dan nog worden toegevoegd: ongevoeligheid voor niet te grote variaties van de frequentie van de gegeven wisselspanningen. Als mogelijke toepassingen worden hoogtemeters en afstandmeters genoemd.

2334: H. B. G. Casimir: On the theory of superconductivity (herdruk van: Niels Bohr and the development of physics, Pergamon Press, Londen 1955).

Overzicht van bepaalde aspecten der supergeleiding en van voorgestelde theorieën voor dit verschijnsel.

2335: J. de Jonge en B. H. Bibo: The preparation of ortho and para hydroxybenzyl alkyl ethers (Rec. trav. Chim. Pays-Bas **74**, 1448-1452, no. 11).

Alkylethers van ortho- en para-hydroxybenzylalcohol kunnen met een behoorlijke opbrengst worden bereid door hydroxybenzylalcohol met de desbetreffende alkylalcohol tot 150 °C te verhitten.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

2336: G. Thirup: Wide-band three-phase *RC*-generators for complex measurements of two-poles and four-poles (J. Brit. Instn. Rad. Engrs. **15**, 597-605, 1955, no. 12).

Uit een driefazige *RC*-oscillator worden twee spanningen verkregen, waarvan de complexe verhouding kan worden gevarieerd. De complexe verhouding is onafhankelijk van de frequentie. De beide spanningen worden in een compensatieschakeling gebruikt om de parameters van tweepolen en vierpolen te meten. In het artikel worden twee apparaturen beschreven, die de frequentiegebieden 20 Hz-22 kHz, resp. 22 kHz-10 MHz bestrijken. De mogelijke fout bedraagt $\pm 0{,}5$ dB en $\pm 2°$ in het frequentiegebied 100 Hz-3 MHz. Buiten dit gebied kan de fazefout ongeveer driemaal zo groot worden, terwijl de amplitudefout ongeveer hetzelfde blijft.

2337: P. Jongenburger: The magneto-resistance of metals deformed at low temperatures (Suppl. Bull. Inst. Int. du Froid, Annexe 1955).

Zorgvuldig uitgegloeide draden van zuiver koper werden bij 20 °K plastisch vervormd. Voor en na de vervorming werd bij dezelfde temperatuur de verandering van hun weerstand in een magneetveld gemeten. Zet men de uitkomsten in een diagram volgens Kohler uit, dan vindt men een grote invloed van de vervorming. Aangetoond kan worden dat dit effect uitsluitend aan dislocaties toe te schrijven is; het is onafhankelijk van de gelijktijdige aanwezigheid van puntvormige roosterfouten.

2338: F. A. Kröger: The physical chemistry of crystal phosphors (Proc. Inst. Rad. Engrs. **43**, 1941-1944, 1955, no. 12).

Na een historische inleiding geeft de schrijver een overzicht van de tegenwoordige inzichten omtrent de bouw en de bereiding van anorganische kristalfosforen. Bijzondere aandacht wordt besteed aan het inbouwen van atomen met een andere valentie dan die der atomen van het grondmateriaal en aan het instellen van atomen op een bepaalde valentie.

Verschenen zijn:

P. A. Neeteson: Analysis of bistable multivibrator operation. The Eccles-Jordan flip-flop circuit (Philips' Technische Bibliotheek, Meulenhoff & Co. N.V., Amsterdam 1956, 82 blz., 34 figuren).

De bistabiele multivibrator, uitgevonden door Eccles en Jordan in 1919, heeft jarenlang weinig aandacht getrokken, tot hij ca. tien jaar geleden plotseling uitgebreide toepassing heeft gevonden in de impulstechniek. Het boven aangekondigde boek (dissertatie Delft) geeft voor het eerst een gedetailleerde analyse van de werking, in het bijzonder van de verschijnselen tijdens het omslaan. Als praktisch resultaat van deze analyse kan worden vermeld de ontwikkeling van speciale buizen voor dit soort van schakelingen.

De twaalf hoofdstukken van het boek zijn als volgt getiteld: 1. General introduction. 2. Survey of literature. 3. Introduction to the problem. 4. Opening or closing of switches in a network. 5. The static condition of the bistable multivibrator. 6. The dynamic condition. 7. The complete trigger cycle. 8. The trigger sensitivity. 9. The triggering speed. 10. Design considerations. 11. Variations of the fundamental circuit and way of triggering. 12. Conclusion. Hierna volgen nog een vijftal aanhangsels met berekeningen.

W. A. Holm: Televisietechniek zonder formules (Philips' Technische Bibliotheek, Meulenhoff & Co. N.V., Amsterdam 1956, XV + 316 blz., 246 figuren).

Door geen gebruik te maken van formules, heeft de schrijver van bovengenoemd boek een voor vele belangstellenden in de televisietechniek ernstig struikelblok vermeden, terwijl hij toch ernaar heeft gestreefd, ook moeilijke zaken op wetenschappelijk verantwoorde wijze uiteen te zetten. Het boek vormt daardoor voor de radiomonteur en de radiotechnicus een goede inleiding tot de televisietechniek. Ook de ingenieur zal het in vele gevallen met vrucht kunnen raadplegen.

De zes hoofdstukken hebben de volgende titels: 1. Grondslagen van de overdracht van bewegende beelden. 2. Elektronische opneem- en weergeefinrichtingen. 3. Het videosignaal. 4. Trillingen, elektronenbuizen, impulsen. 5. Het televisiesignaal. 6. De televisieontvanger. Een aanhangsel, waarin de projectietelevisie en de verschillende televisiesystemen worden behandeld, en een index besluiten het boek.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!